

# 環境中長半衰期核種之 ICP-MS 分析 完成報告

計畫編號：NSC 88-TPC-7-032-003

實行時間：88 年 2 月 1 日至 88 年 7 月 31 日

計畫主持人：許道平      淡江大學水環系

共同主持人：門立中      核能研究所

## 目錄

中文摘要	-----	1
英文摘要	-----	2
一. 緒論	-----	3
二. 文獻回顧	-----	8
三. 實驗設備、材料及方法	-----	11
四. 結果與討論	-----	22
五. 參考文獻	-----	35
六. 謝誌	-----	37
附件一. ICP-MS 之質譜圖	-----	38
附件二. 研究成果摘要報告	-----	44

## 中文摘要

長久以來環境中核種偵測以放射性活度量，然而，核種之比活度低、半衰期長，傳統方法偵測不易，如 I-129 半衰期為  $1.57 \times 10^7$  年須經多次濃縮後才能以傳統方法偵測，且 I-129 為核武測試和核燃料製造時 U-235 和 Pu-239 之分裂產生，碘-129 經大氣、海洋、雨水及食物互相遷移，又半衰期長不斷累積於環境中。因此，碘-129 應長期監測其放射劑量。本研究擬以感應耦合電漿質譜儀分析法 (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, ICP-MS) 應用於核種分析，ICP-MS 為一微量同位素及多元素分析技術，具有許多優點：低偵測極限、分析時間短、簡單質譜等。

本研究之目的在於探討磁場式高解析 ICP-MS 偵測核電廠廢水中 I-129 之可行性。結果顯示：以 Iodine-2000 樹脂在 4M  $K_2CO_3$  溶液調理下，I-129 被樹脂吸附時不受海水之影響。ICP-MS 檢測濃度之線性範圍：0~1.26 ng/mL，偵測極限為 9pg/mL。以 ICP-MS 偵測廢水中 I-129 之步驟加以討論敘述，且可行性高。

**關鍵詞：**碘-129、感應耦合電漿質譜儀

## Abstract

Iodine-129 is a long-lived radioactive nuclide with a half-life of  $1.6 \times 10^7$  a and decays to an excited state of  $^{129}\text{Xe}$  with the emission of a  $\beta$ -particle. The major fraction of I-129 in the environment is due to nuclear weapons test and nuclear facilities. Although the concentration of I-129 in the environmental samples is very low, but there is the danger of I-129 accumulation in nature because of the extreme long half-life of this radionuclide.

Some analytical methods based on radiochemical neutron activation analysis (RNAA), laser-induced fluorescence spectrometry, accelerator mass spectrometry and ICP-MS are described for determination of iodine. Very low detection limits for I-129 up to  $10^{-14} \text{gg}^{-1}$  can be achieved by using RNAA. However, this analytical technique is very time-consuming and less suitable for routine control of I-129 in environmental sample.

In this study, double-focusing sector field ICP-MS is used for determination of I-129. ICP-MS allows a sensitive and fast multi-element and isotopic measurement. The linear range of detection for I-129 is up to  $1.26 \text{ ngmL}^{-1}$ . The limit of detection was  $9 \text{ pgmL}^{-1}$ . The results showed that the I-129 can be concentrated by the resin (I-2000) after conditioning with  $4\text{M K}_2\text{CO}_3$  solution and also can be done in sea water. The feasibility of this ICP-MS technique for I-129 are discussed.

**Keywords:** I-129, ICP-MS

## 一. 緒論

長久以來，環境中核種由於核能之使用產生放射性物質不斷增加，為了確實掌控能源的利用及對環境之衝擊，對某些特定核種必須做長期分析監測。傳統上以放射性活度度量，不失為靈敏且有效分析技術，尤其結合化學分離技術及放射性強度度量，可應用於不同樣品之核種分析，然而在下列四種情況時<sup>(1)</sup>，放射性度量分析方法已經不適合使用，(1) 若二個核種放射型態相同，能量又很接近，儀器之解析度又無法克服能譜波峰之重疊，如  $^{239}\text{Pu}$  及  $^{240}\text{Pu}$  二者化學性質相同，其阿伐能譜之能量為 5.15 MeV 及 5.16 MeV，半衰期分別為  $2.41 \times 10^4$  年及  $6.57 \times 10^3$  年，無法分辨及定量此二核種，若以感應耦合電漿質譜儀 (Inductively coupled plasma-mass spectroscopy, ICP-MS) 偵測，可輕易分別定量，蓋 ICP-MS 之測定原理為根據二者原子量之不同而得。(2) 貝它能譜由於是連續性且涵蓋範圍比較大，常有較嚴重重疊現象，因此，如  $^{147}\text{Pm}$  和  $^{151}\text{Sm}$  需經多次繁雜耗時的分離程序避免其他核種干擾，而得純化之個別核種。(3) 核種之比活度 (specific activity) 太低，即單位重之放射性活度少，通常半衰期較長之核種，其比活度較低，傳統方法偵測不易，如  $^{129}\text{I}$ ，半衰期為  $1.57 \times 10^7$  年，比活度僅  $1.62 \times 10^{-4}$  Ci/g，需經多次濃縮後才能以傳統方法偵測，若能改用 ICP-MS，較適宜定量分析。(4) 為了降低偵測極限值而需要很長計測時間，或大量樣品時，例如尿液樣品中  $^{239+240}\text{Pu}$  之偵測值為  $8.5 \times 10^{-5}$  Bq，則需  $6 \times 10^5$  秒 (約一週) 或是數公升之尿液，因此不適

合以放射法直接偵測。在相同活度下，若半衰期愈長，則原子數目  $N$  愈多，即極易以儀器分析方法偵測。本研究之目標在探討以 ICP-MS 應用於核種分析碘-129 之可行性。

ICP-MS 是一種微量同位素及多元素分析技術，它結合 ICP 的原子化和游離化特性，以及質譜儀的高靈敏度和偵測同位素的能力。ICP-MS 具有許多優點：相當低的偵測極限，質譜圖比發射光譜圖簡單許多，可直接進行同位素定性與定量分析等。ICP-MS 若以質量分析器的區別又可分為三種：四極式(quadrupole)ICP-MS，高解析度的磁場式(magnetic sector field)ICP-MS，以及去年剛問世的飛行式(Time-of-flight, TOF)。

碘在自然界中物種分佈比較複雜，主要由於碘原子有很大的原子半徑，而其氧化態可以由-1 到 7，極易與其他元素或化合物反應。碘-129 在自然界主要來自天然鈾自發分裂和大氣層頂部氙(Xe)受宇宙射線撞擊後分裂而成，天然所產生的碘-129 預計大約為 1.5 TBq。另碘-129 亦分別由核武測試和核燃料製造時，鈾-235 和鈾-239 受中子誘發分裂之產物也進入自然界。

在核反應分裂產物中，碘-129 為半衰期較長的揮發性核種之一，其半衰期約為一千六百萬年，其母核種碲-129，半衰期只有 69 分鐘，衰變後產生碘-129 和 1.453 MeV 之貝它粒子(70.5 % )，與能量分別為 989 KeV(15.4 % )，

690 KeV (3.7 % ) 與 290 KeV (10.4 % ) 的電子。碘元素一共有 37 個同位素，如表 1-1 所示<sup>(3,10)</sup>質量數由 115 到 141，穩定核種僅有碘-127。而碘-129 衰變後放初 150 KeV 貝他粒子，39.6 KeV 加馬射線，X-射線和穩定同位素氙-129 (Xe-129)。

碘-129 能經由大氣、海洋、雨水及食物而相互遷移。毒性亦不小且長半衰期、不斷累積於環境中又容易被生物吸收、因此碘-129 應長期監測其放射劑量之核種。

表 1-1 碘同位素、半衰期、放射方式與放射能量

同位素	半衰期/含量	主要放射方式	能量 (MeV)
$^{113}\text{I}$	1.3 m	$\beta^+$ +EC	$Q_{\text{EC}}$ 5.80
$^{116}\text{I}$	2.9 s	$\beta^+$	6.74
		EC	0.679(8.3%)
$^{117}\text{I}$	2.2 m	$\beta^+$ (46%)	3.50, 3.25
		EC(54%)	0.2744, 0.3259
$^{117}\text{I}$	7 m	-	-
$^{117}\text{I}$	14.5 m	$\beta^+$	-
$^{118}\text{I}$	14.3 m	$\beta^+$ (54%)	5.445
		EC(46%)	0.605(95%)
$^{118\text{m}}\text{I}$	8.5 m	$\beta^+$	4.9, 4.3
		EC	0.5998, 0.6049, 0.6138
		IT	0.104
$^{119}\text{I}$	19.3 m	$\beta^+$ (51%)	2.35
		EC(49%)	0.257(90%)
$^{120}\text{I}$	1.35 h	$\beta^+$ (54%)	4.595(19.0%), 4.030(13.5%), 2.490(6.7%)
		EC(46%)	0.560(73%)
$^{120\text{m}}\text{I}$	53 m	$\beta^+$	3.75, 3.13
		EC	0.560(100%)
$^{121}\text{I}$	2.12 h	$\beta^+$ (6.4%)	1.2
		EC(93.6%)	0.212(84%)
$^{122}\text{I}$	3.6 m	$\beta^+$ (77%)	3.12
		EC(23%)	0.564(18%)
$^{123}\text{I}$	13.0 h	EC	0.159(82.9%)
$^{124}\text{I}$	4.2 d	$\beta^+$ (25.0%)	2.1341, 1.533
		EC(75.0%)	0.603(61%)
$^{125}\text{I}$	60.2 d	EC	0.035(6.7%)
$^{126}\text{I}$	13.0 d	$\beta^+$ (1.0%)	1.129
		EC(53%)	0.66633
		$\beta^-$ (46%)	1.250, 0.865, 0.385
		$\gamma$	0.389(35%)
$^{127}\text{I}$	100%	-	-
$^{128}\text{I}$	24.99 m	$\beta^+$ (0.0035%)	-
		EC(6.4%)	0.7435
		$\beta^-$ (93.6%)	2.120, 1.665, 1.125
		$\gamma$	0.443(16%)
$^{129}\text{I}$	$1.6 \times 10^7$ y	$\beta^-$	0.150
		$\gamma$	0.040(7.5%)
$^{130}\text{I}$	12.36 h	$\beta^-$	1.78(0.4%), 1.04(48%), 0.62(52%)
		$\gamma$	0.536(99.0%)



表1-1 碘同位素、半衰期、放射方式與放射能量 (續)

同位素	半衰期/含量	主要放射方式	能量 (MeV)
$^{130m}\text{I}$	9.2 m	IT(83%) $\beta^-$ (17%)	0.0482 2.48, 1.85 0.536(17%)
$^{131}\text{I}$	8.040 d	$\beta^-$ $\gamma$	0.81(0.6%), 0.6065(86%), 0.336(13%) 0.364(81%)
$^{132}\text{I}$	2.28 h	$\beta^-$ $\gamma$	2.118 0.668(98.7%)
$^{132m}\text{I}$	83 m	IT(86%) $\beta^-$ (14%)	0.098 1.47, 0.84, 0.73 0.600(13.2%)
$^{133}\text{I}$	20.9 h	$\beta^-$ $\gamma$	1.27, 0.94, 0.7 0.530(86%)
$^{133m}\text{I}$	9 s	IT	0.913(100%)
$^{134}\text{I}$	52.6 m	$\beta^-$ $\gamma$	2.41, 2.21, 1.68, 1.49, 1.25, 1.05 0.847(95.4%)
$^{134m}\text{I}$	3.5 m	IT(98%) $\beta^-$ (2%)	0.272(79%) -
$^{135}\text{I}$	6.61 h	$\gamma$ $\beta^-$	0.2343 1.32, 0.87 1.26(29%)
$^{136}\text{I}$	46 s	$\beta^-$ $\gamma$	5.17, 4.67 1.313(100%)
$^{136}\text{I}$	83 s	$\beta^-$ $\gamma$	5.37, 4.70, 3.96 1.313(68%)
$^{136}\text{I}$	100 s	-	-
$^{137}\text{I}$	24.5 s	$\beta^-$ $\gamma$ n	5.01 1.219(13.4%) 0.56(average)
$^{138}\text{I}$	6.5 s	$\beta^-$ $\gamma$ n	- 0.589(93%) -
$^{139}\text{I}$	2.3 s	$\beta^-$ $\gamma$	- -
$^{140}\text{I}$	0.8 s	n(10.2%) $\beta^-$ $\gamma$	- - 0.3771, 0.4577
$^{141}\text{I}$	0.5 s	n(14%) $\beta^-$ $\gamma$ n(60%)	- - 0.338, 0.414, 0.475, 0.572 0.160, 0.300, 0.395, 0.450, 0.550

## 二. 文獻回顧

核電廠在運作過程中產生一些含有放射性核種廢料，如碘-129 和 Tc-99、Noe and Heres<sup>(4)</sup>將 ICP-MS 應用於 I-129 和 Tc-99 二核種之偵測，廢料中此二核種易揮發，不宜將樣品直接加熱溶解，因此設計一套特殊的廢料裂解爐，在密閉系統中將樣品溶解後以適合螯合劑及有機溶劑萃取，於有機溶劑中導入 ICP-MS，其真實樣品 I-129 之偵測極限在  $2 \times 10^{-3}$  Bq/g 範圍，ICP-MS 方法之優點為簡易快捷，利於大量樣品分析之需求。在 1993 年，Rosenberg 對核子燃料中長半衰期核種的非放射性分析方法作一篇回顧性的文章<sup>(5)</sup>，對 Tc-99、I-129、Cs-135、Np-237、Pu 同位素族群分別探討，特別推崇 ICP-MS 的分析時間短，不需繁雜的化學分離程序，而且預測在此一領域之應用應逐漸受到重視。

M.J. M. Wagner 等人<sup>(6)</sup>利用質譜儀 (AMS) 研究阿爾卑斯冰河層 (1950~1980) 內 I-129 含量及分佈時，I-129 至少 90 % 以碘離子 ( $I^-$ ) 形態存在，配合全球碘循環箱式模型，計算核武器試爆落塵中，I-129 平均滯留時間與遷移百分比為 I-129 在土壤和深層海水均為 1000 年。1945 年以前，I-129/I-127 在礦物與甲狀腺中之比值分別為  $10^{-12}$  和  $10^{-10}$  <sup>(7-9)</sup>。但是 1950 年分析美國人甲狀腺 I-129 之含量，結果發現 I-129/I-127 比值由  $1 \times 10^{-11} \sim 2.5 \times 10^{-9}$  上升為  $1 \times 10^{-6}$ ，不過 1970~1990 年其平均比值已經降為  $1 \times 10^{-8}$ ，全世界生物圈 I-129 之分佈情形為北半球 I-129/I-127

比值高於南半球比值約 5~20 倍。

碘-129 放射性化學分析方法包括液體閃爍計數儀、中子活化分析低能加馬能譜、高能加馬能譜及感應耦合電漿質譜儀等。表二是利用不同分析方法時偵測極限值。

表 2-1 各種分析方法偵測 I-129 之偵測極限<sup>(3,11)</sup>

分析方法	偵測極限 (atoms)
加馬能譜	$10^{13}$
中子活化法 (NAA)	$10^7$
感應耦合電漿質譜儀 (ICP-MS)	$10^8$
加速器質譜儀 (Accelerator MS)	$10^6$

中子活化分析法測定 I-129 核種，其原理為經中子照射後，經由  $^{129}\text{I} (n, r)^{130}\text{I}$  反應產生具放射性之 I-130，其半衰期為 12.36 小時，於衰變過程中釋出相當強度之加馬射線（如 536 KeV, 740 KeV, 668 KeV）用以定性及定量，中子活化法具有優點如下；極佳之偵測靈敏度且選擇性高，非破壞性分析，但是所需照射設備昂貴，人員設備易受放射性污染。

一般而言，長半衰期核種在自然界存在的問題已經引起輻射防護機構的重視，希望能降低目前偵測核種濃度極限，ICP-MS 被應用於核種分析原因之一，只要核種半衰

期超過 1 年以上，便能達到  $10^7$  個原子的質譜儀偵測極限<sup>(11)</sup>，利用 ICP-MS 分析碘-129 等長半衰期核種之優點如下：縮短分析時間、簡化分離程序及增加偵測靈敏度等<sup>(5)</sup>。

### 三. 實驗設備、材料及方法

#### 3-1 實驗設備

##### 3-1-1 感應耦合電漿質譜儀

本研究使用感應耦合電漿質譜儀 (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, ICP-MS) 為英國 Micromass 公司之 Plasma Trace 2, 如圖 3-1, 為高解析度 (High Resolution) 磁場式 ICP-MS 亦為 ICP-HRMS。屬於連續性偵測, 依電場或磁場掃描的時間順序偵測欲分析的元素, VG 是最早生產商業化 ICP-HRMS, 於 1989 年推出第一代的 Plasma Trace, 經過一些改進, 於 1994 年推出第二代之 Plasma Trace 2。又於 1996 年 VG 併入 Thermo Instrument 集團後, VG 原有的一些產品轉售於 Micromass 公司, 目前 Plasma Trace 2 由 Micromass 繼續代理。

#### ICP 之基本原理

感應耦合電漿之溫度可達 5 仟至 1 萬 $^{\circ}\text{C}$ , 充分地可將分析物分解游離為帶單一正電荷的原子態離子或化合物離子, 而作為質譜儀的離子源。圖 3-1 為 Plasma Trace 2 外觀, 圖右為蠕動泵, 接著 ICP 及離子聚焦組, 圖中為磁場及電場分析器和離子偵測器, 圖左為電腦及儀控操作區, 下面就各組件特性分述如下:

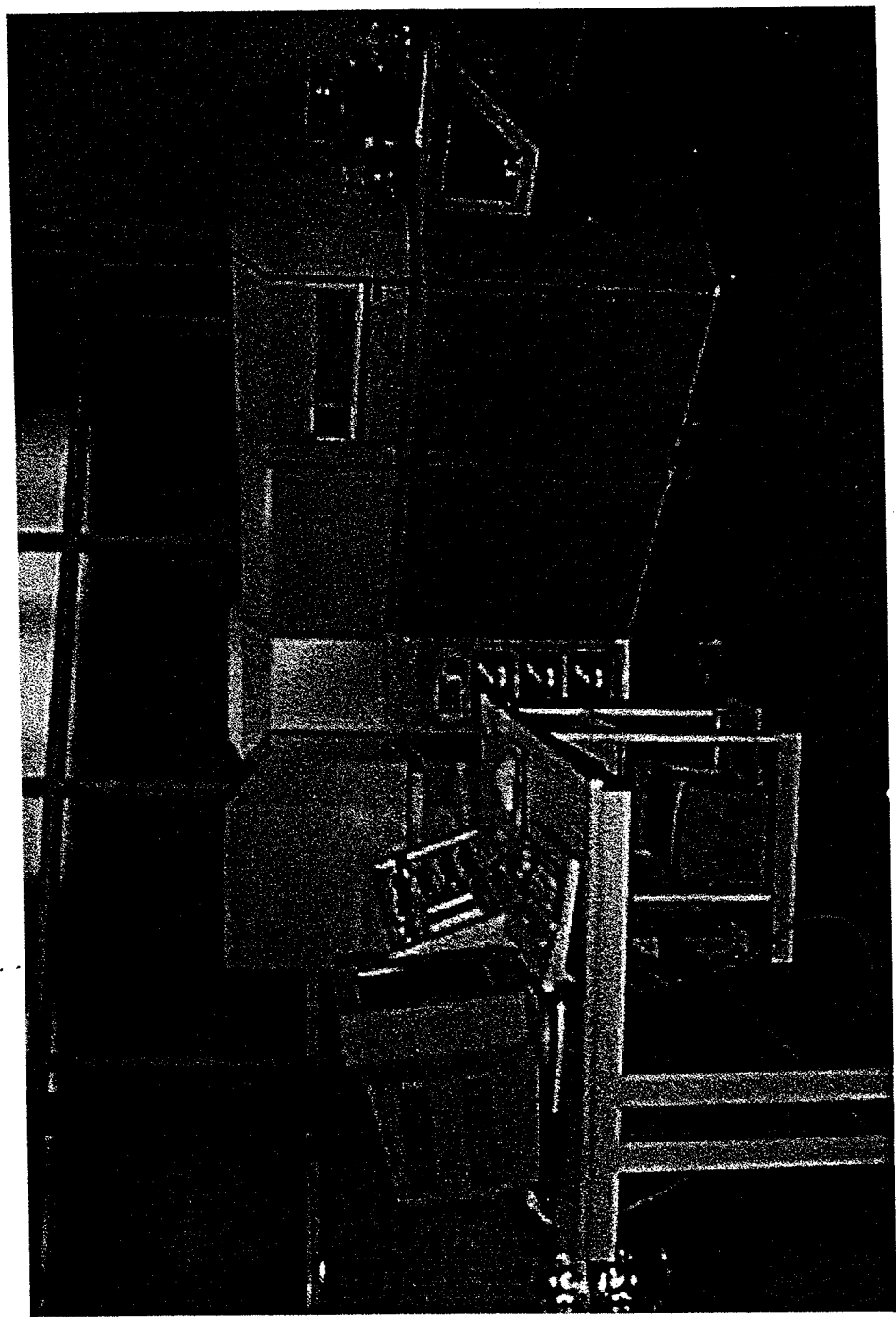


圖 3-1 Plasma Trace 2 外觀

1. ICP 系統 - 樣品以蠕動泵定量注入霧化器 (Nebulizer)，以霧化器為同心軸流式，如圖 3-2 由三層石英管製成，最外層氫氣以切線方向進入，其目的為產生渦旋使電漿於管中心穩定形成，流量約  $15 \text{ Lmin}^{-1}$ ，稱之為冷卻氣流 (Coolant gas flow)，中層氫氣為輔助氣流 (Auxiliary gas flow)，流量為  $1 \text{ Lmin}^{-1}$ ，具有調節電漿取樣位置及避免樣品注入管過熱之功能，內層為樣品注入管，以氫氣將以霧化之樣品送入電漿。石英管出口有感應線圈圍繞，由高頻電流產生器產生  $27.12 \text{ Mhz}$  頻率感應磁場使帶電粒子 (先通入少量電子或離子) 加速運動增加動能，產生離子化現象，最後產生高熱的電漿。
2. 離子源及取樣之界面 (Interface)：電漿團沿壓差方向進入取樣器，如圖 3-3，首先通過  $1 \text{ mm}$  取樣圓錐體 (Sampling cone)，在經過  $0.5 \text{ mm}$  消滅圓錐體 (Skimmer cone) 後去除大部分離子，少量具代表性離子進入透鏡腔 (quad lenses)。如圖 3-4 多種電壓電極板 ( $5 \sim 8 \text{ kV}$ ) 所組成，使離子加速及一連串的離子透鏡聚焦後進入質量分析器。
3. 質量分析器：此為雙聚焦高解析度質量分析器，包括磁場區和電場區。離子束首先經過磁場，離子因而偏折，其偏折半徑由下列二式表示：

$$m/z = B^2 r^2 e / 2V$$

$$r = (2mV/B^2 e)^{1/2} \quad z = 1 \text{ 時}$$

式中  $m$  為離子質量， $z$  為電荷數， $r$  為磁場偏折半徑， $B$  為電場強度， $V$  為電壓差， $e$  為電子電

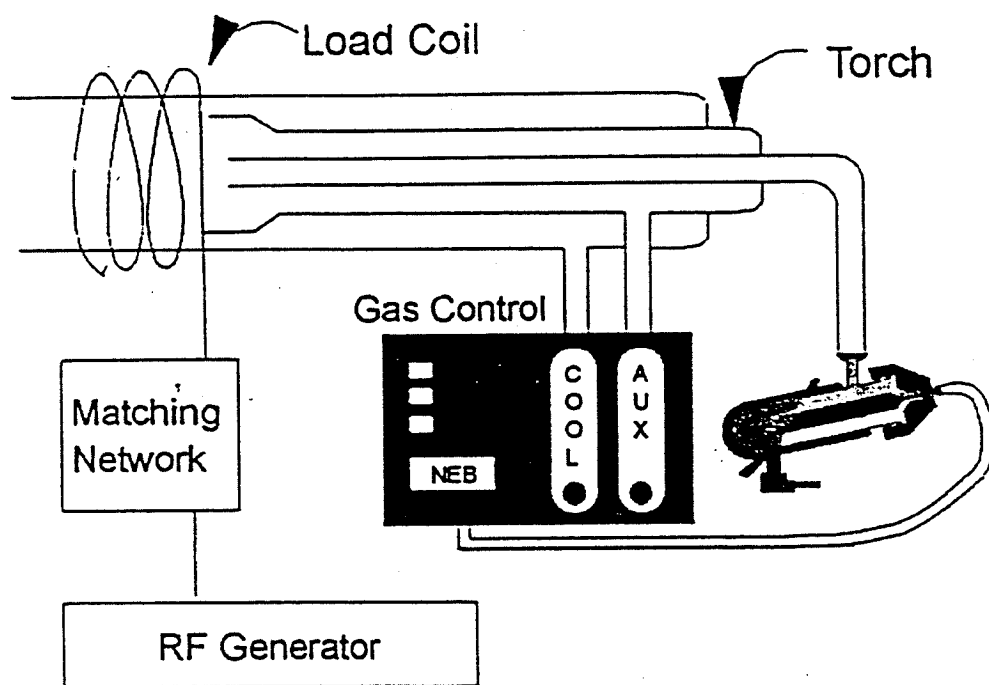


圖 3-2 進樣霧化同心管



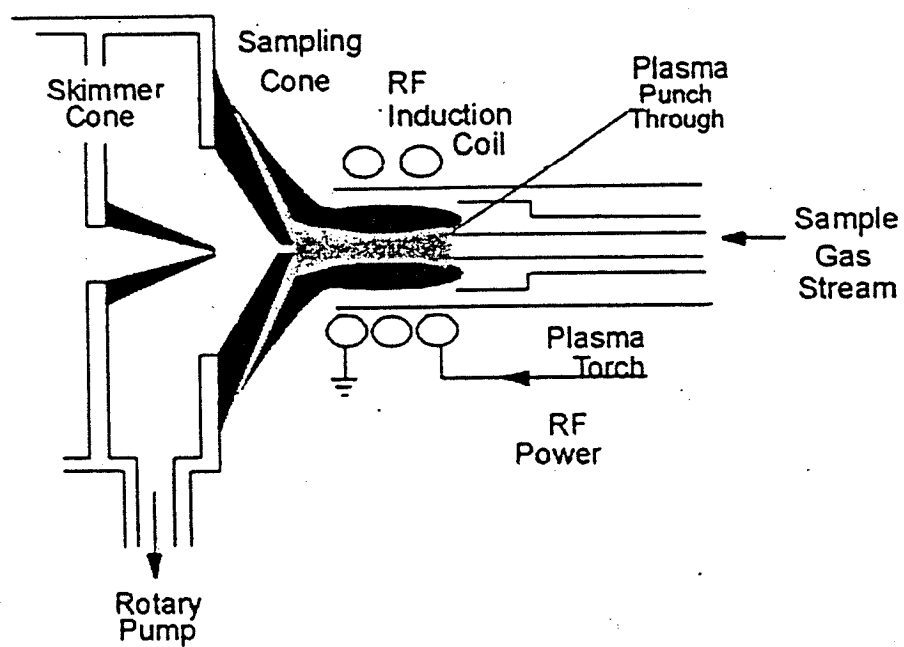


圖 3-3 取樣界面裝置

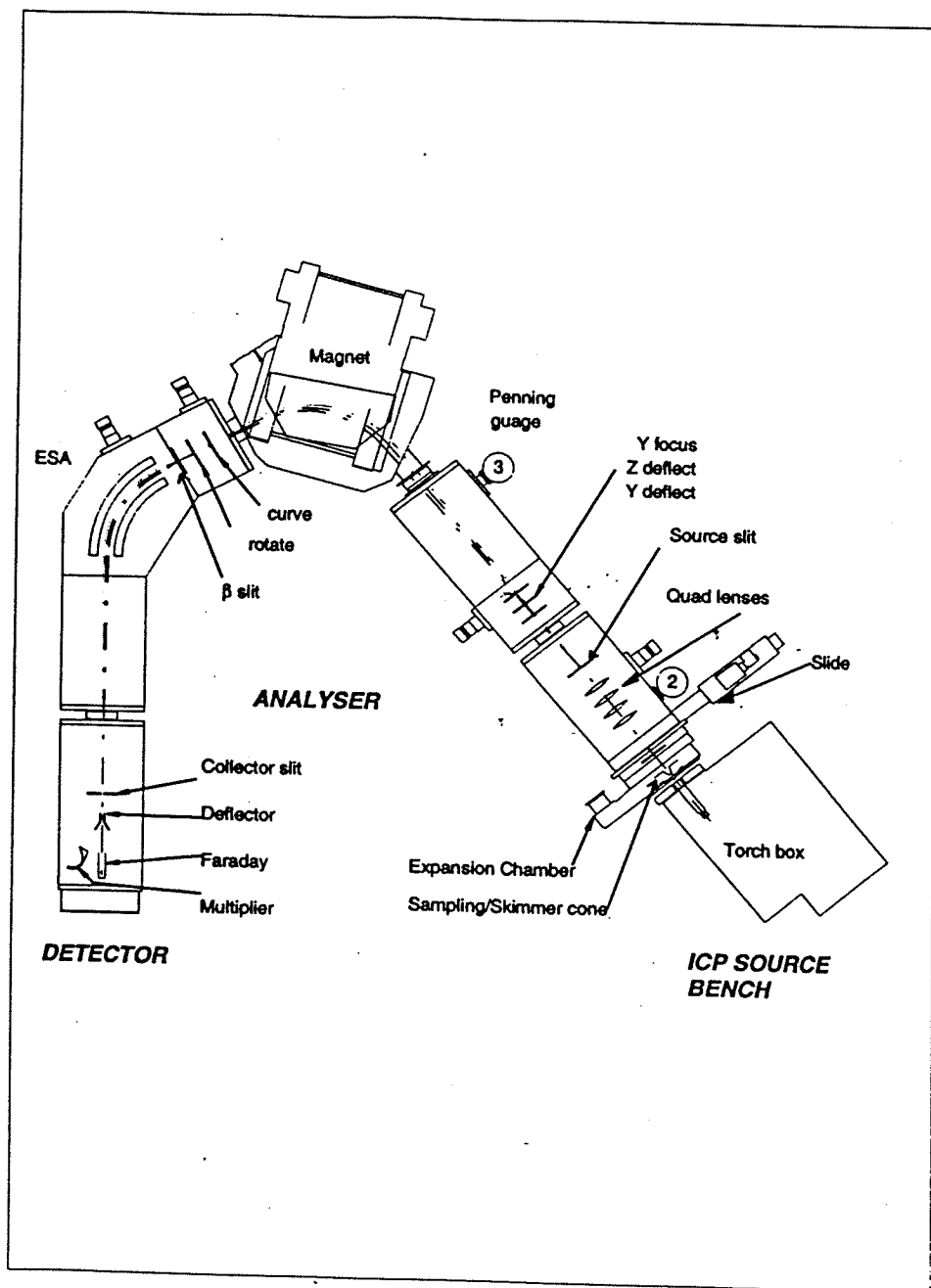


圖 3-4 ICP 之示意圖，(2) 表示離子聚焦多重電極板

荷， $r$  為接著離子進入電場區如圖 3-5，再偏折離子，其半徑為  $R=2V/E$ ， $R$  為離子軌跡之半徑， $E$  為電場強度（電壓）。

4. 離子偵測器：有兩種可供選擇，一為脈衝計數另一為法拉第杯(Faraday cup)，脈衝訊號可使用高靈敏度之電子倍增器(multiplier)類比訊號對使用靈敏度較低之法拉第杯。
5. 作業系統：以 OS/2 系統支援儀器之功能設定功能及調整和資料收集均由電腦控制及操作。

3-1-2 液體閃爍計數儀(Tri-Carb 2550 TR/RB, Packard, U.S.A)。基本上，偵測原理為利用輻射粒子（ $\beta$ 射線）與偵檢物質的原子或分子被激發、游離，然後度量其由激發態回覆至穩定態所釋放的閃爍光，由光電管偵知後，經一連串信號處理，如脈高分析裝置(Pulse-Height Analyzer)再送入計數器成為計數累積。

3-1-3 精密天平：可精秤至 0.1 mg，Model. AE2000，(Mettler, Switzerland)。

## 3-2 實驗藥品與試劑

3.2.1 試劑水：Milli-Q plus 及 Milli-R0 Plus30 處理系統，為逆滲透處理，導電度為  $18.3 \text{ M}\Omega \text{ cm}^{-1}$ ，

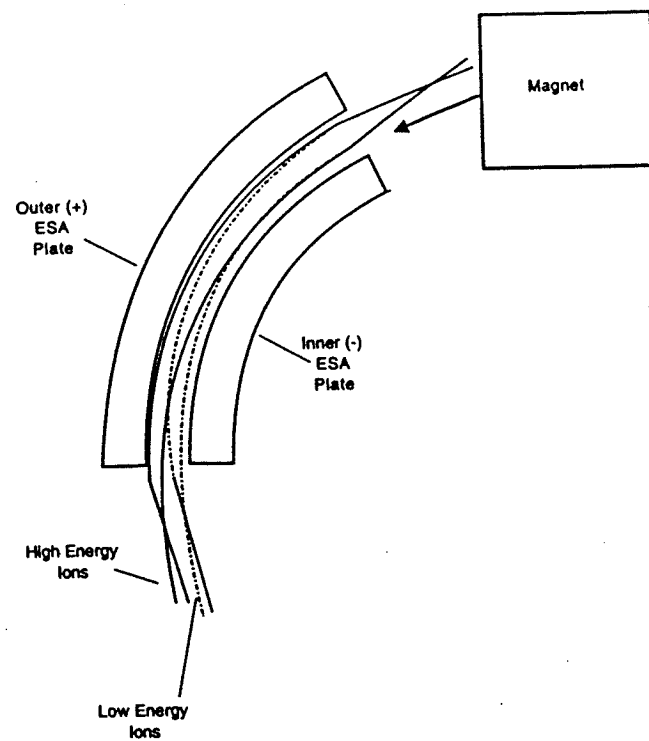


圖 3-5 電場質量分析器

(Millipore, U.S.A)。

3.2.2 濃硝酸 ( $\text{HNO}_3$ )：65%，分析級，(MERCK, Germany)。

3.2.3 碳酸鉀 ( $\text{K}_2\text{CO}_3$ )：小顆粒狀，分析級，(MERCK, Germany)。

3.2.4 氯化鈉 ( $\text{NaCl}$ )：分析級，(MERCK, Germany)

3.2.5 碘化鉀標準品 (KI)：SRM 4949C I-129 Radioactivity Standard 17KBq in 0.01M NaOH (5mL)。

3.2.6 碘化鉀 (KI)：屬於碘-127，分析級 (MERCK, Germany)

3.2.7 樹脂 (resin)：Iodine-2000，I2-B200-C，粒徑大小 60-100 mesh，(Eichrom, U.S.A.)。

3.2.8 液體閃爍劑 (cocktail)：ULTIMA GOLD™ LLT，(Packard, U.S.A)。

### 3.3 實驗方法

3.3.1 器皿清洗：所使用之器皿皆以下列步驟清洗  
首先將玻璃器皿以試劑水清洗後，再以玻璃專用清潔  
浸泡一天，接著以試劑水清洗 3 次，再以 5% $\text{HNO}_3$  浸  
泡一天後，便以試劑水清洗 5 次，置於清淨室內涼乾。

#### 3.3.2 方法一

碘-2000 樹脂吸附 I-129 之實驗步驟如下

1. 清洗樹脂：取約 40g 樹脂，以約 12 公升之試劑水清洗。

2. 填充管柱(管柱直徑 0.7 公分(D))：將以清洗乾淨之樹脂裝填管柱，填入高度為 5 公分(h)，因此管柱內樹脂體積為 ( $1/4 \pi D^2 h = 1/4 \times 3.14 \times 0.72 \times 5 = 1.923$ ) 1.92c. c.。共填充 4 支管柱。

3. 調理樹脂：4 支管柱分別以 5mL 不同濃度之碳酸鉀溶液(濃度分別為 0.5, 1, 2, 4M)流洗 6 次，分別收集於塑膠瓶中，共 24 瓶。

4. 加入碘化鉀溶液(KI, I-129) 50  $\mu$ L (2150Bq  $\rightarrow$   $2.7 \times 10^{-6}$  moles) 於管柱中。

5. 吸附 20 分鐘。

6. 4 支管柱分別以 5mL 不同濃度之碳酸鉀溶液(濃度分別為 0.1, 1, 2, 4M)流洗 10 次，分別收集於塑膠瓶中，共 40 瓶。

7. 4 支管柱各以試劑水流洗 10 次，分別收集於塑膠瓶中，共 40 瓶。

8. 將所得 104 瓶之塑膠瓶，各加入 5mL 液體閃爍劑，混合均勻。

9. 以液體閃爍計數器，計數 15 分鐘並紀錄結果。

### 3.3.3 方法二

離子強度對樹脂(Iodine-2000)吸附 I-129 影響實驗步驟如下：

1. 填充管柱：如 3.3.3 之步驟 2.。

2. 調理樹脂：以 30mL 4M 碳酸鉀溶液流洗。

3. 配製不同離子強度(氯化鈉溶液) 0.1、0.5、1M、海水，分別取 450  $\mu$ L 加入 50  $\mu$ L 碘化鉀(I-129)，

所以離子強度為 0.09、0.45、0.9M 和 90% 海水。

4. 將步驟 3. 配製好之溶液分別加入管柱中，並讓樹脂吸附 20 分鐘。

5. 以 5mL 4M 碳酸鉀溶液流洗 10 次，分別收集於塑膠瓶中，共 40 瓶。

6. 以 5mL 試劑水流洗 8 次，分別收集於塑膠瓶中，共 32 瓶。

7. 將所得 72 瓶之塑膠瓶，各加入 5mL 液體閃爍劑，混合均勻。

8. 同 3.3.3 步驟 9.。

3.3.4 尋找 ICP-MS 最佳操作條件之實驗步驟如下：

1. 開機，待儀器穩定後。

2. 以是事先配製好 1.26 ppb KI(I-127) 溶液，由 ICP-MS 偵測之。

3. 首先改變 Rf 功率(1200~1550W)，得其最大計數值 (counts)。

4. 接著改變噴霧器流速(0.75~1.1mL/min)得最大計數值 (counts)

5. 改變其他必要參數，可得最大計數值為止。

## 四. 結果與討論

### 4.1 碳酸鉀溶液之濃度對樹脂 (Iodine-2000) 吸附 I-129 影響之結果

本研究首先以樹脂 (Iodine-2000) 管柱測試按照實驗方法中方法一實驗步驟，經不同濃度之碳酸鉀溶液調理後，樹脂管柱對於 I-129 吸附能力，結果如表 4-1。再經不同濃度碳酸鉀溶液濃度對於碘-2000 樹脂清洗階段和以試劑水脫附等之流出液加入液體閃爍劑後，再以液體閃爍計數儀偵測，結果再以圖 4-1 表示。管柱 D 經 4M  $K_2CO_3$  溶液調理及清洗階段使用 80mL 後，I-129 依然留在管柱 D，若以試劑水脫附隨即流出。其中以管柱 A 來經 0.5M 碳酸鉀溶液調理後，再經 0.5M 碳酸鉀溶液流洗後，I-129 由液體閃爍計數後立即出現。所以 0.5M 碳酸鉀溶液對於 KI (I-129) 並無吸附能力。其他如管柱 B (由 1M 碳酸鉀溶液調理、流洗) 和管柱 C (由 2M 碳酸鉀溶液調理、流洗)，I-129 出現時間隨碳酸鉀溶液濃度增加而延長，其碘-2000 樹脂吸附能力亦隨之增加。因此，最後決定採用 4M 碳酸鉀溶液來調理樹脂 (Iodine-2000) 進行往後的實驗。



表 4-1 碘-129 於碘-2000 樹脂管柱中，經不同濃度碳酸鉀溶液調理及清洗和試劑水脫附階段流出液之放射性強度

	每階段 累積體積 (mL) *	Column A 0.1M K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	Column B 1M K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	Column C 2M K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	Column D 4M K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>
調 理 階 段	5	49	279	624	1325
	10	62	417	758	1571
	15	58	347	742	1627
	20	65	327	792	1474
	25	59	422	760	1525
	30	76	347	751	1453
清 洗 階 段	5	88008	3751	814	1610
	10	22129	50021	2254	1535
	15	743	27819	13393	1547
	20	111	3645	26587	1648
	25	97	665	34301	1708
	30	71	447	8934	2248
	35	77	433	3359	2314
	40	79	358	2115	2624
	45	73	367	1555	2993
	50	68	387	1169	3471
脫 附 階 段	5	93	237	572	76816
	10	36	33	38	503
	15	26	25	30	107
	20	22	28	34	55
	25	19	33	18	57
	30	29	31	25	46
	35	23	26	34	45
	40	27	24	25	33
	45	24	23	20	31
	50	26	34	29	37

\*每瓶體積為 5mL

第一階段 5~30mL 以  $K_2CO_3$  調理  
 第二階段 5~50mL 以  $K_2CO_3$  清洗  
 第三階段 5~50mL 以  $H_2O$  脫附

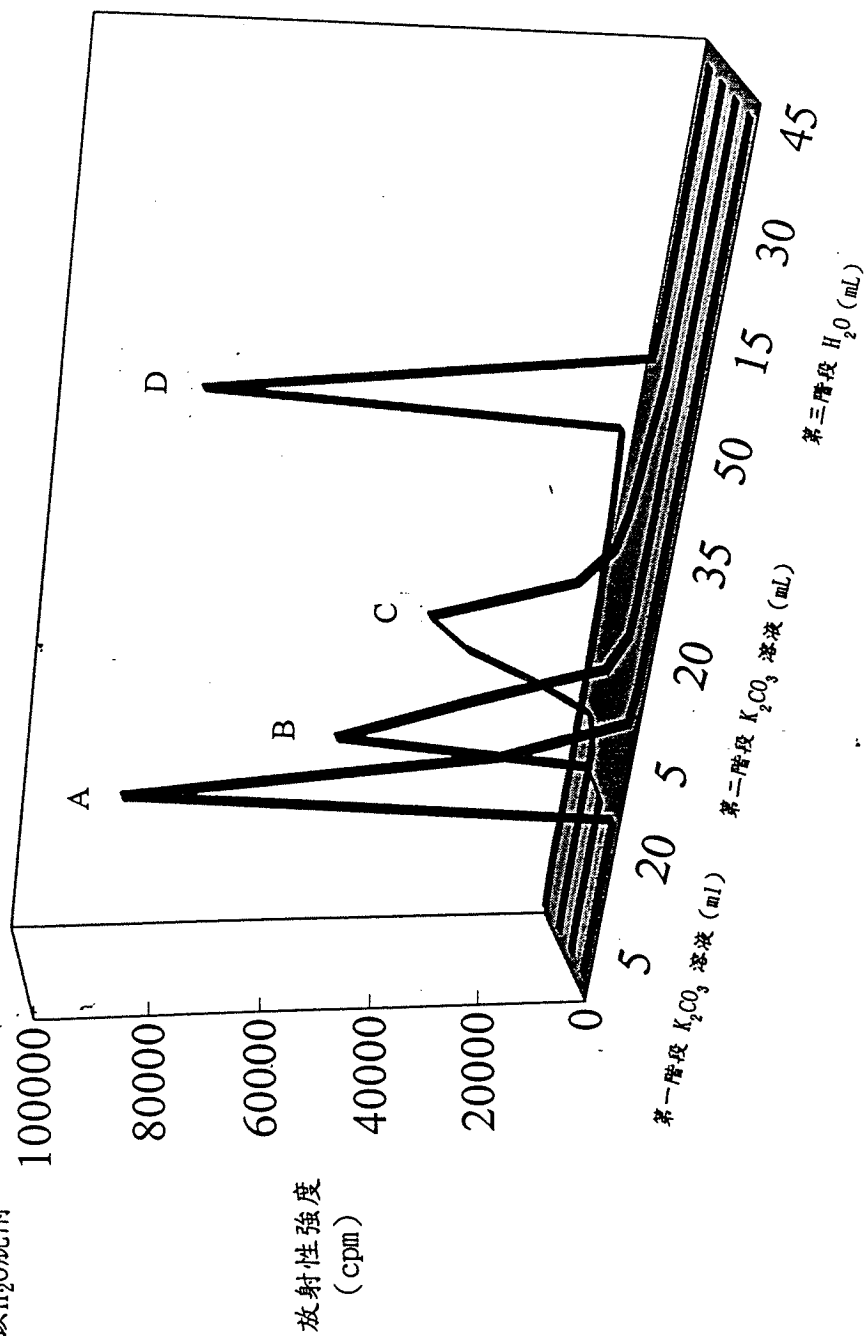


圖 4-1 碘-129 被碘-2000 樹脂經不同濃度  $K_2CO_3$  溶液調理後（第一階段）、吸附、清洗（第二階段）及脫附（第三階段），其體積與流出液放射性強度（cpm）之圖

## 4.2 離子強度對樹脂 (Iodine-2000) 吸附 I-129 影響之結果

樹脂 (Iodine-2000) 經 4M 碳酸鉀溶液調理，加入不同濃度氯化鈉溶液及 KI (I-129) 溶液吸附 20 分鐘，經 4M 碳酸鉀溶液及試劑水流洗後，結果如表 4-2 及圖 4-2，顯示管柱 E (加 0.09M NaCl)、管柱 F (加 0.45M NaCl)、管柱 G (加 0.90M NaCl)、管柱 H (加 90% 海水) 中，I-129 出現時間與閃爍計數數皆大致相似。因此，可以推論樹脂 (Iodine-2000) 經 4M 碳酸鉀溶液調理後，其吸附能力不受高濃度氯化鈉溶液之干擾。

## 4.3 ICP-MS 實驗參數之最佳化

本實驗中，對於 ICP-MS 之實驗參數，對 Rf 功率及噴霧器流速，其他參數皆依原先儀器之設定。首先改變 Rf 功率，範圍由 1200~1550W，其 I-129 之數據列於表 4-3，並繪於圖 4-3，由圖可得知 Rf 功率最佳值為 1350W。接著固定最佳 Rf 功率，改變噴霧器流速，其範圍為 0.75~1.1 (mL/min)，所得之數據列於表 4-4，並繪於圖 4-4。觀察圖 4-4 得知噴霧器流速於 0.95 mL/min 時為最佳。最後將 ICP-MS 之最佳操作條件列於表 4-5。

表 4-2 離子強度對樹脂 (I-2000) 吸附 I-129 之影響

每階段 累積體積 (mL) *		Column D 0.00M NaCl	Column E 0.09M NaCl	Column F 0.45M NaCl	Column G 0.90M NaCl	Column H 90% 海水
清洗 階段	5	1610	1922	1731	1548	2242
	10	1535	1949	1755	1785	2162
	15	1547	2172	1970	2098	2316
	20	1648	2434	2331	2279	2442
	25	1708	3145	2585	2654	2456
	30	2248	4417	3369	3381	2830
	35	2314	5775	4386	4741	3341
	40	2624	7377	6111	6074	4292
	45	2993	8843	7663	7700	5291
	50	3471	9649	9124	9400	6625
脫 附 階 段	5	76816	69205	75148	78959	90123
	10	503	519	604	2239	525
	15	107	101	82	113	58
	20	55	71	54	60	42
	25	57	51	49	55	44
	30	46	59	43	46	48
	35	45	58	33	40	33
	40	33	52	39	40	47

\*每瓶體積為 5mL

第一階段5~50mL以 $K_2CO_3$ 清洗  
 第二階段5~40mL以 $H_2O$ 脫附

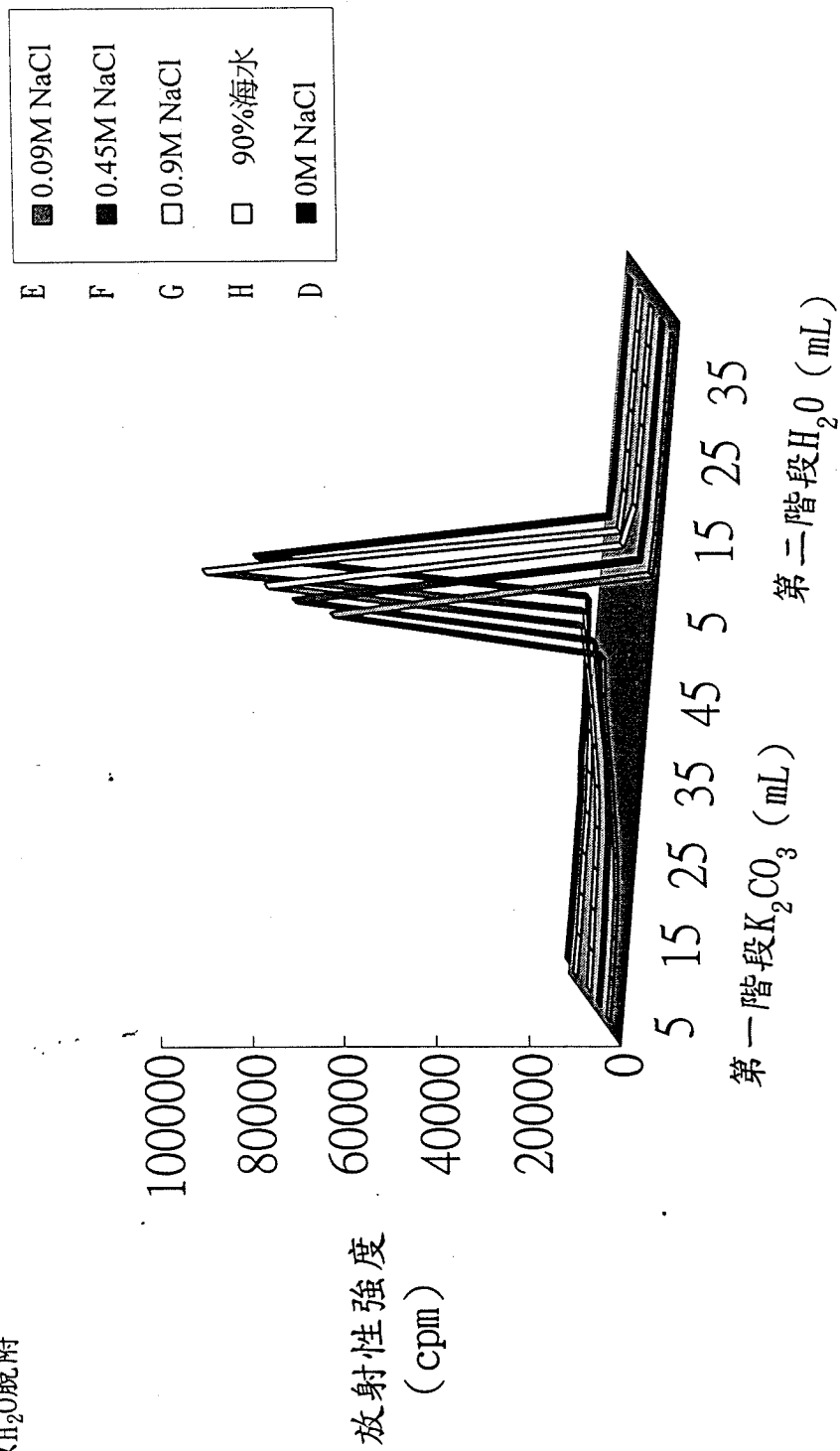


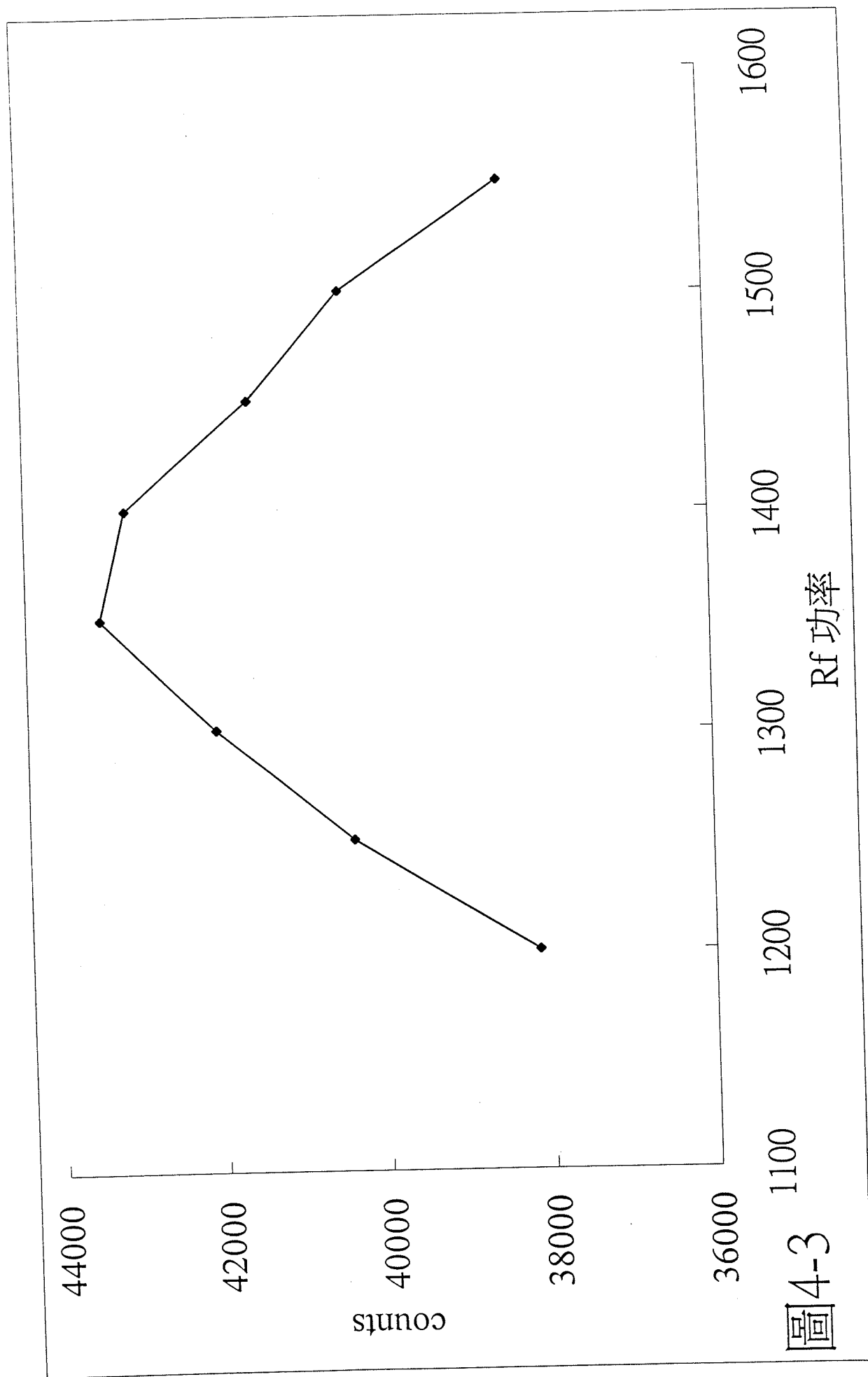
圖 4-2 離子強度對於碘-2000 樹脂吸附碘-129 影響之圖

表 4-3 ICP 之參數 Rf 功率之改變對偵測計數值

	Rf 功率(W)	平均counts
1	1200	38144
2	1250	40387
3	1300	42052
4	1350	43460
5	1400	43128
6	1450	41593
7	1500	40448
8	1550	38460

表 4-4 ICP 之參數噴霧器流速之變化對偵測計數值

	噴霧器流速 (mL/min)	平均 counts
1	0.75	8617
2	0.80	16658
3	0.85	30865
4	0.90	47123
5	0.95	50131
6	1.00	42875
7	1.05	31141
8	1.10	14216



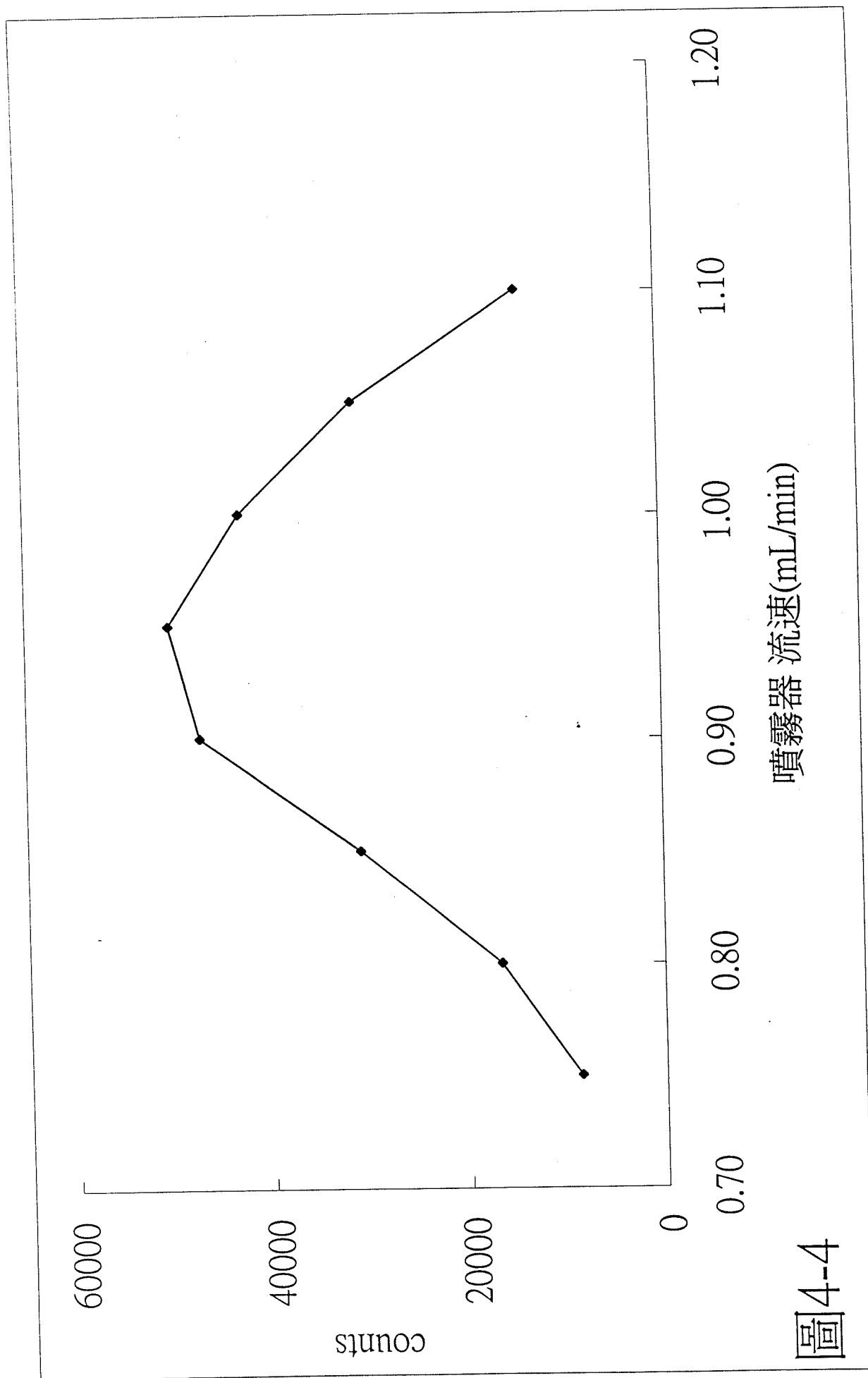




表 4-5 ICP-MS 儀器操作條件及參數

ICP-MS	Micromass Plasma Trace2
Foward Rf power	1350 W
Nebulizer	Meinhard
Coolant gas flow rate	16.5 Lmin <sup>-1</sup>
Auxiliary gas flow rate	1.44 Lmin <sup>-1</sup>
Nebulizer gas flow rate	0.95 Lmin <sup>-1</sup>
Mass range of scan	126~135 $\mu$
Mass resolution	400
Dwell time	20ms
Solution uptake rate	0.5 mLmin <sup>-1</sup>
Optimization	Maximum ion intensity of 1.26 ngmL <sup>-1</sup> <sup>127</sup> I <sup>+</sup>
Sample cone	Nickel with a 1mm orifice
Skimmer cone	Nickel with a 0.5mm orifice

#### 4.4 I-129 之 ICP-MS 檢量線之建立及最低檢測濃度 (LOD)

將配置之標準 KI 溶液 (I-129) 逐一以磁場式高解析度感應耦合電漿質譜儀，至少分析 7 次，將所得數據列於表 4-6，並繪於圖 4-5。其線性相關係數 ( $R^2$ )  $>0.9999$ 。而其偵測極限  $LOD=3 \times (s/S)$ ，其中  $s$  為空白樣品之基線雜訊之標準差、 $S$  則為檢量線之斜率，所以檢測極限為 9 pg/mL。

表 4-6 ICP-MS 對 I-129 (ppb) 之偵測數值

	blank	0.0126	0.1260	0.2520	0.6300	1.2600
1	4878	5507	9765	15421	30417	55587
2	4814	5626	10090	15463	30080	56395
3	5113	5605	9899	14900	30633	57806
4	4963	5641	9903	15305	30812	56960
5	4815	5438	10282	15120	31470	57013
6	5104	5608	10200	15168	31969	58199
7	4897	5505	9811	15561	31518	59448
8		5636				58426
9		5522				
10		5583				
平均值	4940.6	5567.1	9992.9	15276.9	30985.6	57479.2
標準偏差	125.5	69.3	199.1	229.3	681.1	1232.9
百分比%	2.5	1.2	2.0	1.5	2.2	2.1

偵測極限            9.0 ppt

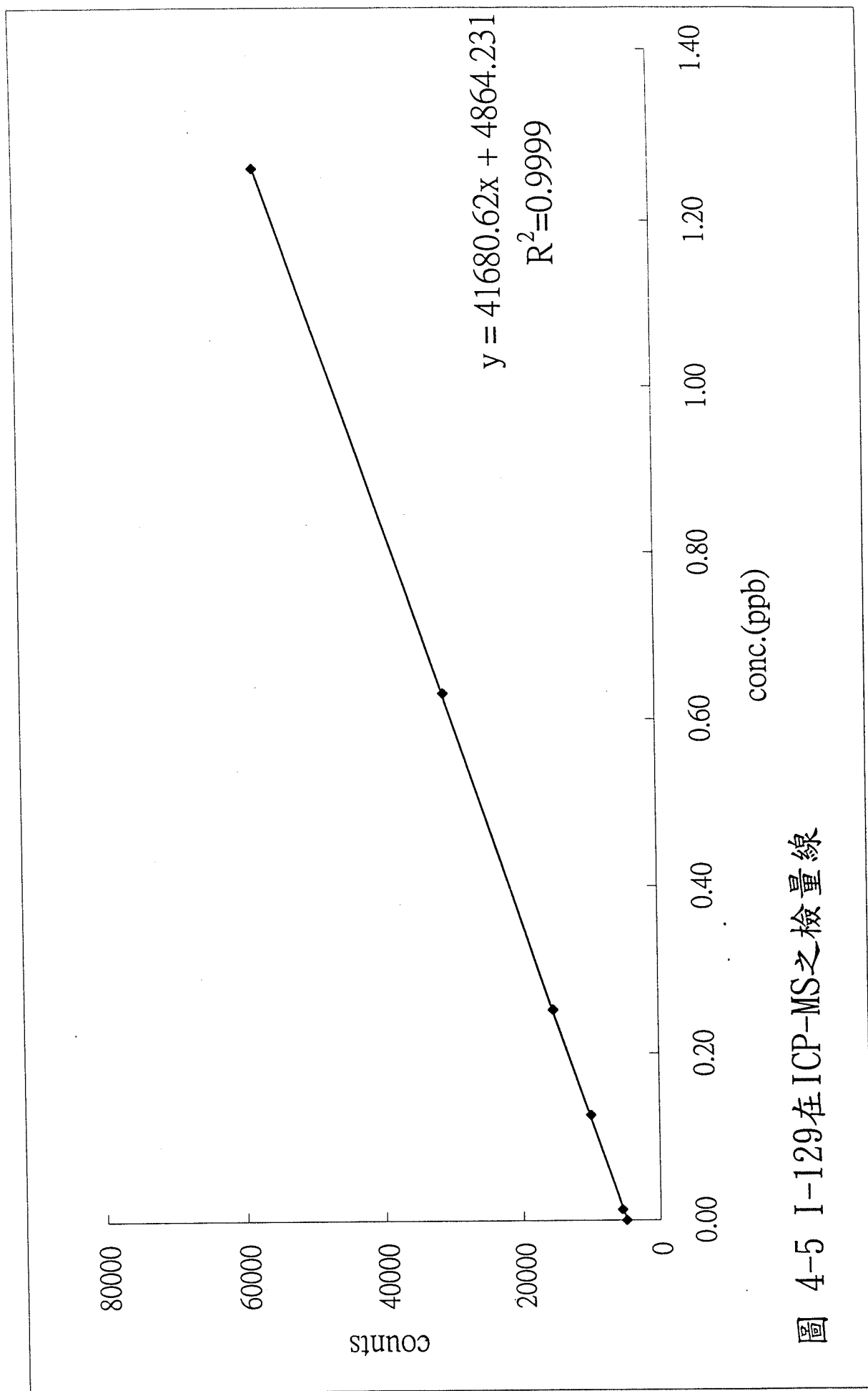


圖 4-5 I-129在ICP-MS之檢量線

## 五. 參考文獻

1. R. R. Ross, J. R. Noyce and M. M. Lardy, *Radioactivity and Radiochemistry* 4, 24 ( 1993 ).
2. 門立中, “ICP-MS 在核能相關領域之分析應用” 科儀新知, 20, 32 ( 1998 )。
3. 劉公典, “碘-129 的分佈與放射化分析” 核研季刊, 二十八期, 91, 1998 年 7 月。
4. M. Noe and A. Heres, ASTM STP 1291, R. W Morrow and J. S. Crain Eds. American Society for Testing and Materials, 29~37 ( 1995 ).
5. R. J. Rosenberg, *J. Radioanal. and Nuclear Chem.* 171, 465 ( 1993 ).
6. M. J. M. Wagner, et. al, *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B*, 113, 490 ( 1996 ).
7. J. Handl et. al, *Health Phys.*, 58, 609 ( 1990 ).
8. J. Handl et. al, *Health Phys.*, 65, 265 ( 1993 ).
9. J. Handl et. al, *Radiochim. Acta*, 72, 33 ( 1996 ).

10.C. M. Lederer et. al, "Table of Isotopes" 7<sup>th</sup> ed. John Wiley & Sons, Inc. New York ( 1978 ).

11.D. Barcelo ed. "Environmental Analysis" Elsevier, Amsterdam, Netherlands ( 1993 ).

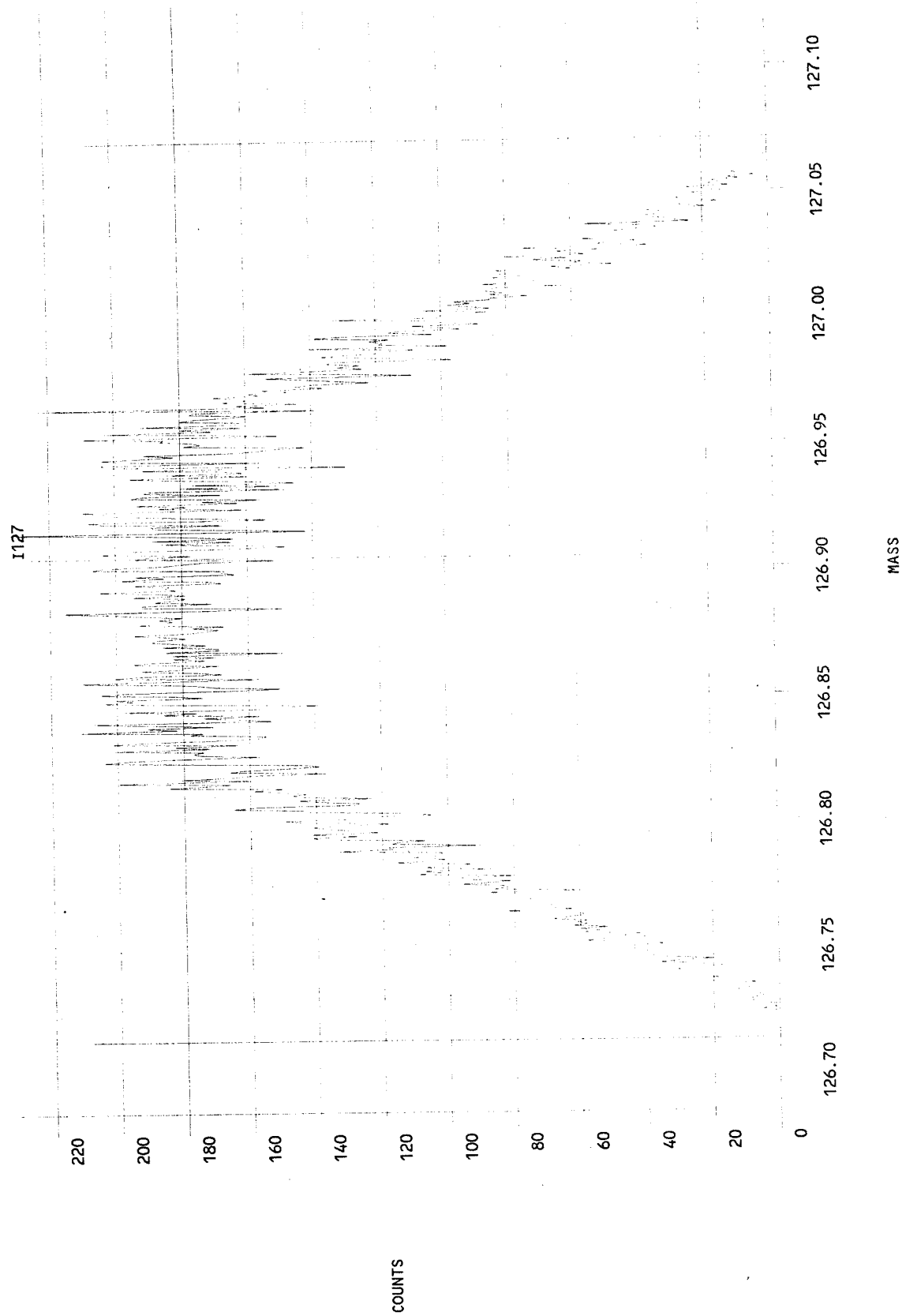
## 六. 謝誌

本研究計畫之經費乃承行政院國家科學委員會與台灣電力公司推動之「電力科技產業學術合作研究計畫」編號 NSC-88-TPC-7-032-003 贊助。

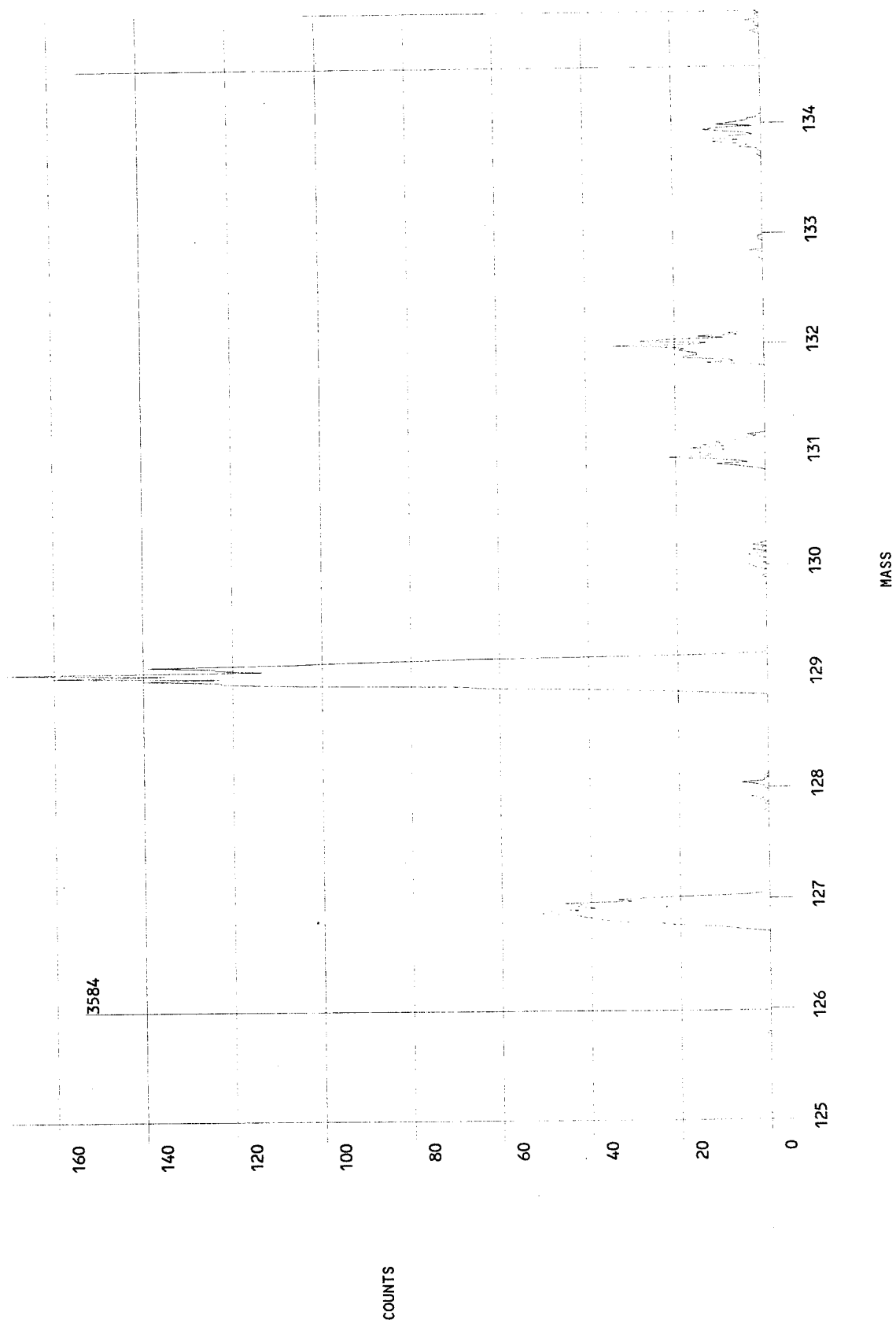
研究分析工作中，特別感謝核研所分析組劉公典、呂錫璋及李詩省先生之協助，遂能順利完成。

## 附件一. ICP-MS 之質譜圖

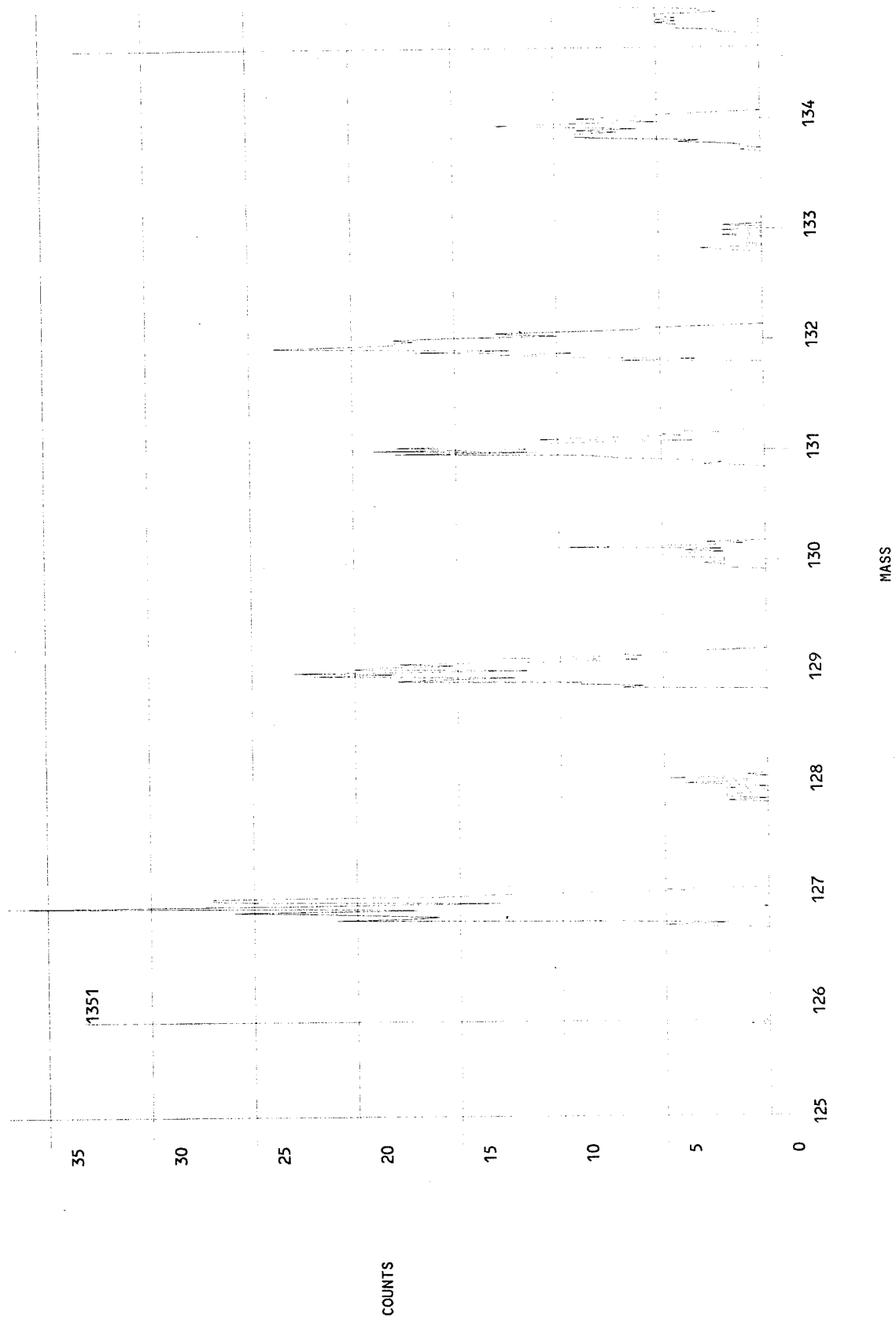




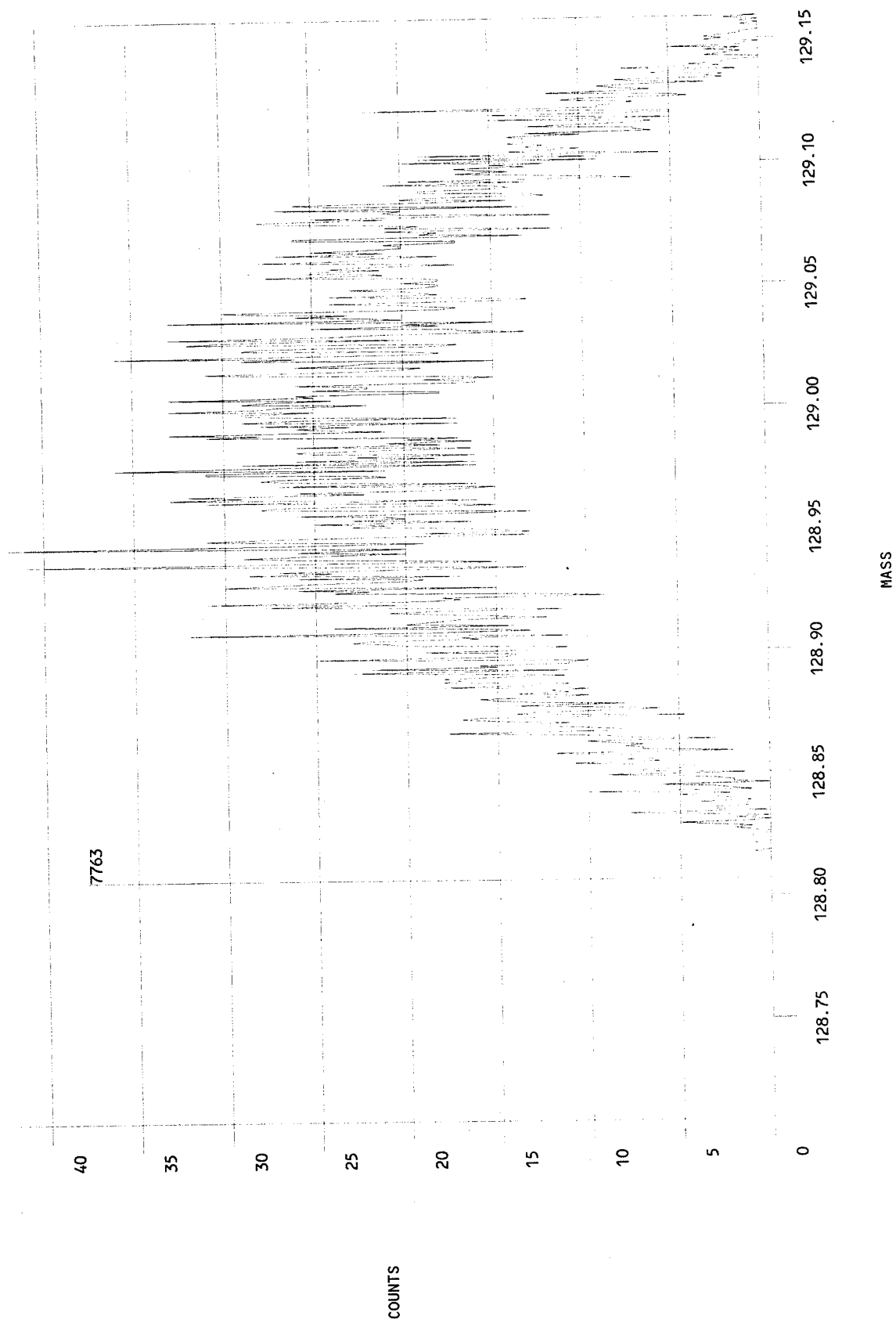
附圖 1：I-127 溶液之 ICP-MS 之圖



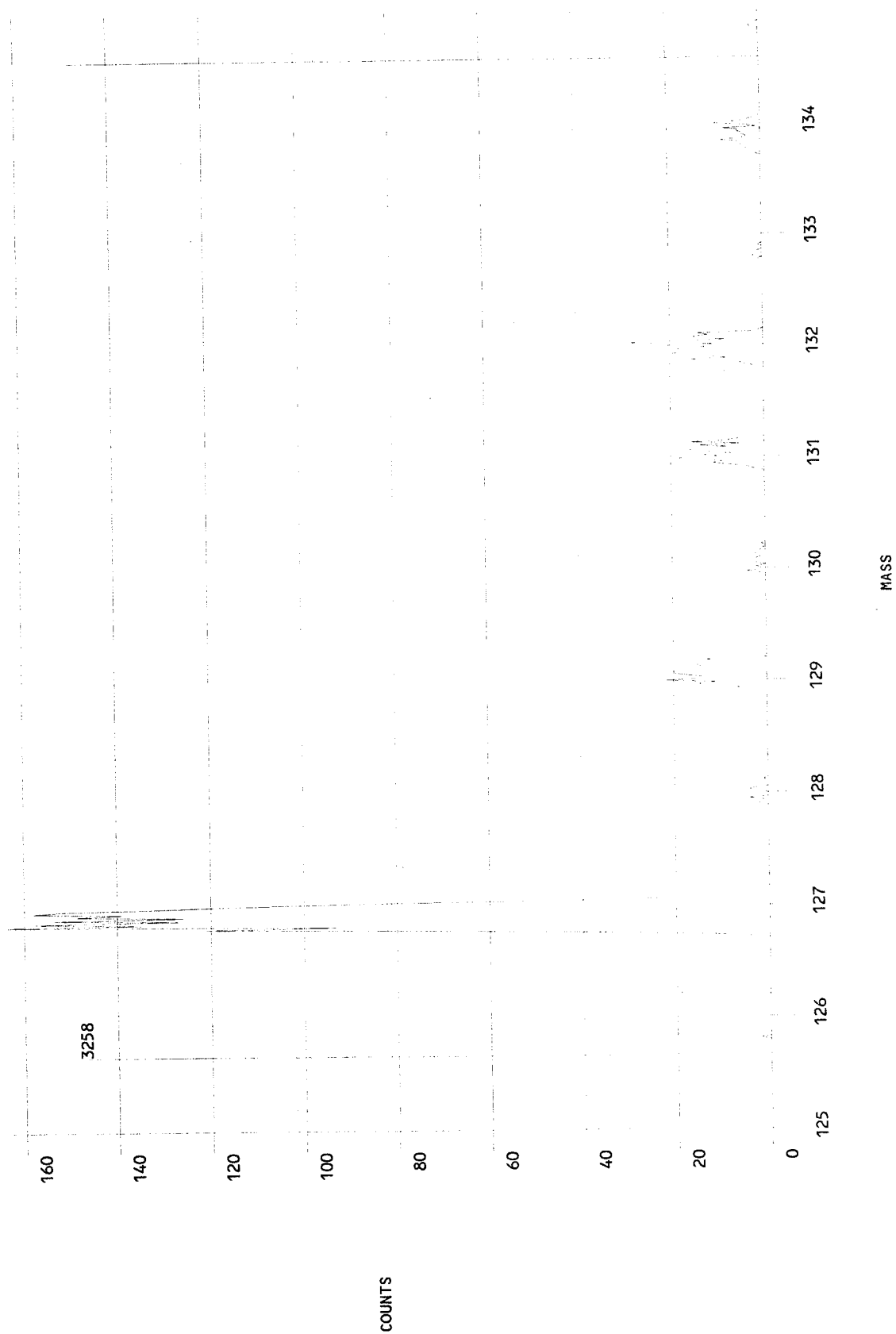
附圖 2：I-129 溶液 (1.26ng/mL) 之 ICP-MS 之圖



附圖 3：試劑水之 ICP-MS 之圖



附圖 4：試劑水之 ICP-MS 之圖



附圖 5：試劑水 (2% $\text{HNO}_3$ ) 之 ICP-MS 之圖

## 附件二. 研究成果摘要報告

八十八年度電力科技產業學術合作研究計畫研究成果摘要報告

環境中長半衰期核種之 ICP-MS 分析

The ICP-MS Analysis of Long Half-life Radionuclides in the Environment

計畫編號：NSC 88-TPC-7-032-003

執行期限：88 年 2 月 1 日至 88 年 7 月 31 日

主持人：許道平 淡江大學水資源及環境工程學系

一. 中文摘要

長久以來環境中核種偵測以放射性活度度量，然而，核種之比活度低、半衰期長，傳統方法偵測不易，如 I-129 半衰期為  $1.57 \times 10^7$  年須經多次濃縮後才能以傳統方法偵測，且 I-129 為核武測試和核燃料製造時 U-235 和 Pu-239 之分裂產生，碘-129 經大氣、海洋、雨水及食物互相遷移，又半衰期長不斷累積於環境中。因此，碘-129 應長期監測其放射劑量。本研究擬以感應耦合電漿質譜儀分析法 (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, ICP-MS) 應用於核種分析，ICP-MS 為一微量同位素及多元素分析技術，具有許多優點：低偵測極限、分析時間短、簡單質譜等。

本研究之目的在於探討磁場式高解析 ICP-MS 偵測核電廠廢水中 I-129 之可行性。結果顯示：以 Iodine-2000 樹脂在 4M  $K_2CO_3$  溶液調理下，I-129 被樹脂吸附時不受海水之影響。ICP-MS 檢測濃度之線性範圍：0 ~ 1.26 ng/mL，偵測極限為 9pg/mL。以 ICP-MS 偵測廢水中 I-129 之步驟加以討論敘述，且可行性高。

Abstract

Iodine-129 is a long-lived radioactive

nuclide with a half-life of  $1.6 \times 10^7$  a and decays to an excited state of  $^{129}Xe$  with the emission of a  $\beta$ -particle. The major fraction of I-129 in the environment is due to nuclear weapons test and nuclear facilities. Although the concentration of I-129 in the environmental samples is very low, but there is the danger of I-129 accumulation in nature because of the extreme long half-life of this radionuclide.

Some analytical methods based on radiochemical neutron activation analysis (RNAA), laser-induced fluorescence spectrometry, accelerator mass spectrometry and ICP-MS are described for determination of iodine. Very low detection limits for I-129 up to  $10^{-14} gg^{-1}$  can be achieved by using RNAA. However, this analytical technique is very time-consuming and less suitable for routine control of I-129 in environmental sample.

In this study, double-focusing sector

field ICP-MS is used for determination of I-129. ICP-MS allows a sensitive and fast multi-element and isotopic measurement. The linear range of detection for I-129 is up

to  $1.26 \text{ ngmL}^{-1}$ . The limit of detection was  $9 \text{ pgmL}^{-1}$ . The results showed that the I-129 can be concentrated by the resin (I-2000) after conditioning with  $4\text{M K}_2\text{CO}_3$  and also can be done in sea water. The feasibility this ICP-MS technique for I-129 are discussed.

## 二. 前言

環境中核種之偵測長久以來以放射性活度度量，不失為靈敏且有效之分析技術，然而，若二種核種放射形式相同且能量又相等，儀器解析度無法克服二者能譜波峰的重疊，則不易定量，如 Pu-239 及 Pu-240 二者化學性質相同<sup>(1)</sup>，能量分別為  $5.15\text{MeV}$  及  $5.16\text{MeV}$ ，半衰期(half-life)分別為  $2.41 \times 10^4$  年及  $6.57 \times 10^4$  年，阿爾伐能譜無法分辨及定量此二個核種。另外，核種的活化度(specific activity)太低，通常半衰期較長之核種，其活化度較低，因此不易使用傳統方法偵測，例如 I-129 半衰期為  $1.57 \times 10^7$  年，比活度僅  $1.62 \times 10^{-4} \text{Ci/g}$ ，傳統偵測方法須經多次濃縮<sup>(1,2)</sup>，才能完成偵測。本計畫擬以感應耦合電漿質譜儀分析方法(Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, ICP-MS)應用於核種分析。

ICP-MS 是一種微量同位素及多元素分析技術，它結合 ICP 的原子化和游離化特性，以及質譜儀的高靈敏度和偵測同位素的能力。ICP-MS 具有許多優點：相當低的偵測極限，質譜圖比發射光譜圖簡單許多，可直接進行同位素定性與定量分析等。ICP-MS 若以質量分析器的區別又可分為三種：四極式(quadrupole)ICP-MS，高解析度的磁場式(magnetic sector field)ICP-

MS，以及去年剛問世的飛行式(Time-of-flight, TOF)。

Noe 和 Heres<sup>(3)</sup>已將 ICP-MS 應用於 I-129 和 Tc-99 二種核種之應用，核電廠在運作過程中產生一些含放射性核種的廢料，廢料中含 I-129 和 Tc-99 核種極易揮發，不宜將樣品直接開放式加熱溶解，因此設計了一套特殊的廢料裂解爐，以密閉系統將樣品溶解，以適當螯合劑及有機溶劑萃取於有機相，再以 ETV 將樣品導入 ICP-MS，其真實樣品 I-129 之偵測極限在  $2 \times 10^{-3} \text{Bq/g}$  範圍，ICP-MS 方法最大優點即在於簡易快捷，有利於大量樣品分析之需求。Rosenberg<sup>(4)</sup>也對核子燃料中長半衰期核種的非放射分析方法加以深入地探討，對 Tc-99，I-129，Cs-137，Np-237，Pu 同位素群分別加以討論，特別推崇 ICP-MS 的分析時間短，不須太繁雜的化學分離程序，其用途漸受重視。本計畫擬以磁場式 ICP-MS 為主，偵測核電廠廢水中 I-129 之可行性，以期能建立非放射性分析方法偵測長半衰期之核種。

## 三. 實驗設備、材料及方法

### 3.1 實驗設備

1. 液體閃爍計數儀 (PACKARD, U. S. A.)。
2. 感應耦合電漿質譜儀：Plasma Trace2 (Micromass, Ltd, UK)。

### 3.2 實驗藥品與試劑

1. 液體閃爍劑：(Cocktail solution)，ULTIMA GOLD™ LLT (PACKARD, U. S. A.)。
2. 樹脂：碘-2000 樹脂，60-100 mesh，I2-B200-C，(Eichrom, U. S. A.)。
3. I-129 標準品：SRM 4949C I-129 Radioactivity Standard  $17 \text{ KBq}$  in



0.01M NaOH (5mL)。

4. 試劑水：自來水經 Milli-Q plus 及 Milli-RO Plus30 處理系統，為逆滲透處理，導電度為  $18.3 \text{ M}\Omega \text{ cm}^{-1}$ ，(Millipore, U.S.A.)。

5. 濃硝酸、碳酸鉀及氯化鈉均購自 (Merck, Germany)。

### 3.3 實驗方法

方法一：碘-2000 樹脂吸附 I-129 實驗步驟如下

1. 清洗樹脂：取約 40g 樹脂於 12 公升之試劑水洗。
2. 填充管柱 ( $0.7 \text{ I.D.} \times 5 \text{ cm}$ )：約 1.92mL，4 支，玻璃製。
3. 以每次 5mL 不同濃度之碳酸鉀溶液 (0.5, 1, 2, 4M) 分別調理管柱，共流洗 6 次，分別收集於塑膠瓶中，共 24 瓶。
4. 添加  $50 \mu\text{L}$  ( $2150 \text{ Bq} \rightarrow 2.7 \times 10^{-6} \text{ moles}$ ) I-129 標準溶液於各管柱，靜置 20 分鐘。
5. 以每次 5mL 相同濃度之碳酸鉀溶液分別清洗於各管柱共 10 次，分別收集於塑膠瓶中，共 40 瓶。
6. 最後以試劑水每次 5mL 流洗各管柱 10 次，分別收集後共 104 瓶樣品，分別加入 5mL 液體閃爍劑，混合均勻後，以液體閃爍計數儀偵測 15 分鐘並記錄結果。

方法二：離子強度對碘-2000 樹脂吸附 I-129 之影響實驗步驟如下

1. 填充管柱：如方法一之

2. 步驟，填充 4 支管柱。

2. 以 30mL 4M 碳酸鉀溶液流洗。
3. 配製 0.1M、0.5M、1M 氯化鈉溶液，分別取  $450 \mu\text{L}$  不同濃度氯化鈉溶液及海水，添加  $50 \mu\text{L}$  I-129 標準溶液混合均勻其濃度分為 0.09M、0.45M、0.9M 和 90% 海水，添加於各管柱，吸附 20 分鐘。
4. 以每次 5mL 4M 碳酸鉀溶液流洗 10 次，分別收集共 40 瓶。
5. 以 5mL 試劑水流洗 8 次，分別收集共 32 瓶。
6. 分別加入 5mL 液體閃爍劑，混合均勻後，以液體閃爍計數儀偵測 15 分鐘並記錄結果。

### 四. 結果與討論

本研究首先以碘-2000 樹脂管柱測試是否能吸附 I-129，按照實驗方法中方法一實驗步驟，可得結果如表 1 所示，經不同濃度碳酸鉀溶液調理及清洗階段和以試劑水脫附等之流出液，加入液體閃爍劑後，以液體閃爍儀偵測。結果再以圖 1 可得 A~C 管柱之 I-129 在清洗階段已經流出管柱，及流洗液增加碳酸鉀濃度，不易脫附 I-129。因此以 4M  $\text{K}_2\text{CO}_3$  溶液 (D 管柱) 無法將 I-129 脫附但以試劑水即可脫附。再者，離子濃度對樹脂 (I-2000) 之影響可以在表 2 及圖 2 顯示，不同濃度氯化鈉溶液對於碘-2000 樹脂吸附 I-129 之能力應無影響，甚至海水。因此碘-2000 樹脂經 4M 碳酸鉀溶液調理後，其吸附能

力不受高濃度氯化鈉溶液之干擾。

ICP-MS 儀器操作條件及參數如表 3，是以 I-127 溶液調整 ICP-MS 各項參數後，再以 I-129 標準溶液可得檢量線如圖 3 其線性相關係數  $R^2 > 0.9999$ ，線性偵測範圍為  $\sim 1.26 \text{ ng mL}^{-1}$ ，偵測極限 (5) 為  $9 \text{ pg mL}^{-1}$ ，檢量線未能通過原點可能為 Xe-129 之干擾，因為氬氣中含有少量的 Xe。

#### 五. 參考文獻

1. R. R. Ross T. R. Noyce and M. M. Lardy, Radioactivity and Radiochemistry 4, 24 (1993)
2. 門立中，“ICP-MS 在核能相關領域之分析應用” 科儀新知，20, 32 (1998)
3. M. Noe and A. Herse, Spec. Tech. Publ. ASTM 1291, 29 (1995)
4. R. J. Rosenberg, J. of Radioanal. and Nuclear Chem., 171, 465 (1993)
5. 黃立新和林金全，“ICP-MS 的基本原理”，科儀新知，20，p. 5 (1998)

表 1 碘-129 於碘-2000 樹脂管柱中，經不同濃度碳酸鉀溶液調理及清洗和試劑水脫

附階段流出液之放射性強度

	每階段 累積體積 (mL) *	Column A	Column B	Column C	Column D
		0.1M K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	1M K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	2M K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	4M K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>
調 理 階 段	5	49	279	624	1325
	10	62	417	758	1571
	15	58	347	742	1627
	20	65	327	792	1474
	25	59	422	760	1525
	30	76	347	751	1453
清 洗 階 段	5	88008	3751	814	1610
	10	22129	50021	2254	1535
	15	743	27819	13393	1547
	20	111	3645	26587	1648
	25	97	665	34301	1708
	30	71	447	8934	2248
	35	77	433	3359	2314
	40	79	358	2115	2624
	45	73	367	1555	2993
	50	68	387	1169	3471
脫 附 階 段	5	93	237	572	76816
	10	36	33	38	503
	15	26	25	30	107
	20	22	28	34	55
	25	19	33	18	57
	30	29	31	25	46
	35	23	26	34	45
	40	27	24	25	33
	45	24	23	20	31
	50	26	34	29	37

\*每瓶體積為 5mL

表 2 碘-129 於碘-2000 樹脂管柱中，經調理後加入不同濃度氯化鈉溶液、以 4M 碳酸鉀

溶液清洗和試劑水脫附階段流出液之放射性強度

	每階段 累積體積 (mL) *	Column D	Column E	Column F	Column G	Column H
		0M NaCl	0.09M NaCl	0.45M NaCl	0.9M NaCl	90%海水
清 洗 階 段	5	1610	1922	1731	1548	2242
	10	1535	1949	1755	1785	2162
	15	1547	2172	1970	2098	2316
	20	1648	2434	2331	2279	2442
	25	1708	3145	2585	2654	2456
	30	2248	4417	3369	3381	2830
	35	2314	5775	4386	4741	3341
	40	2624	7377	6111	6074	4292
	45	2993	8843	7663	7700	5291
	50	3471	9649	9124	9400	6625
脫 附 階 段	5	76816	69205	75148	78959	90123
	10	503	519	604	2239	525
	15	107	101	82	113	58
	20	55	71	54	60	42
	25	57	51	49	55	44
	30	46	59	43	46	48
	35	45	58	33	40	33
	40	33	52	39	40	47

\*每瓶體積為 5mL

表 3 ICP-MS 儀器操作條件及參數

ICP-MS	Micromass Plasma Trace2
Foward Rf power	1350 W
Nebulizer	Meinhard
Coolant gas flow rate	16.5 Lmin <sup>-1</sup>
Auxiliary gas flow rate	1.44 Lmin <sup>-1</sup>
Nebulizer gas flow rate	0.95 Lmin <sup>-1</sup>
Mass range of scan	126~135 $\mu$
Mass resolution	400
Dwell time	20ms
Solution uptake rate	0.5 mLmin <sup>-1</sup>
Optimization	Maximum ion intensity of 1.26 ngmL <sup>-1</sup> <sup>127</sup> I <sup>+</sup>
Sample cone	Nickel with a 1mm orifice
Skimmer cone	Nickel with a 0.5mm orifice

第一階段5~30mL以 $K_2CO_3$ 調理  
 第二階段5~50mL以 $K_2CO_3$ 清洗  
 第三階段5~50mL以 $H_2O$ 脫附

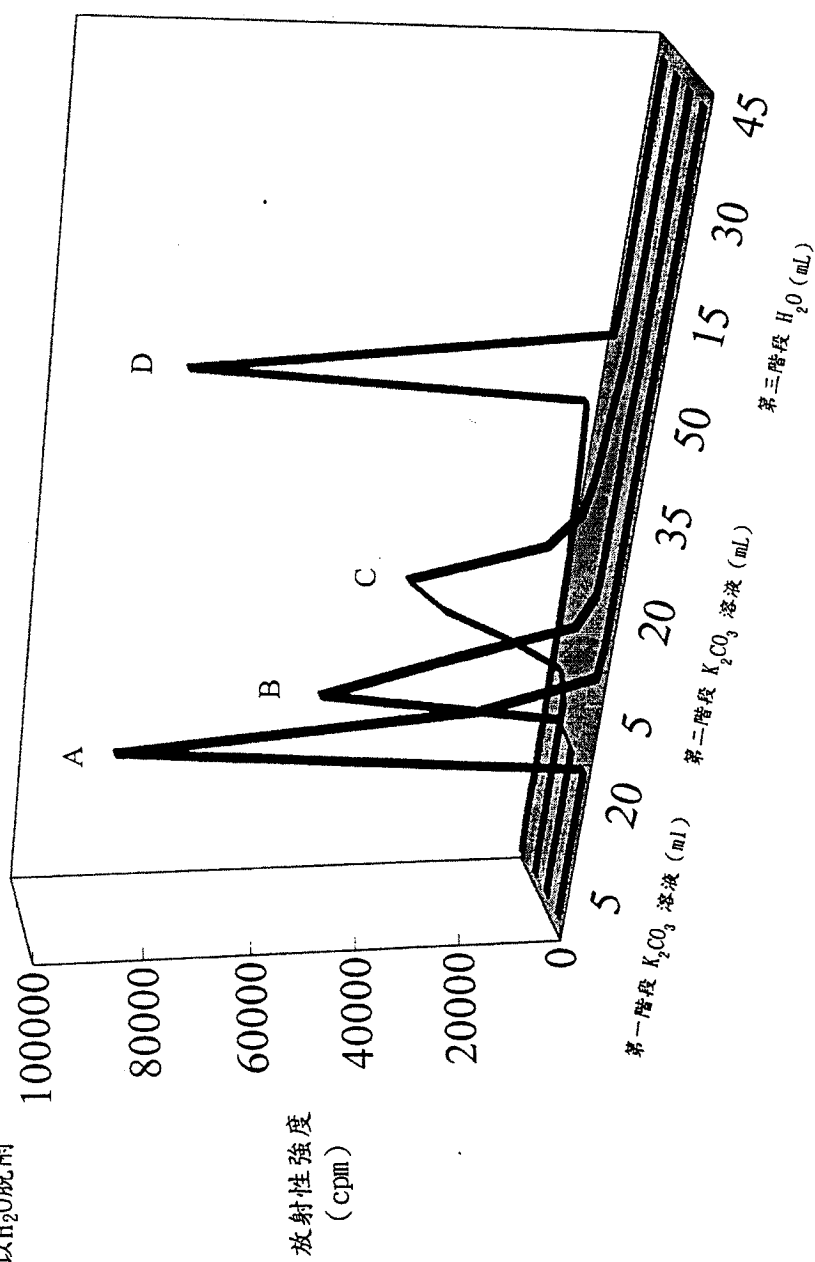


圖 1 碘-129 被碘-2000 樹脂經不同濃度  $K_2CO_3$  溶液調理後 (第一階段)、吸附、清洗 (第二階段) 及脫附 (第三階段), 其體積與流出液放射性強度 (cpm) 之圖

第一階段5~50mL以 $K_2CO_3$ 清洗  
 第二階段5~40mL以 $H_2O$ 脫附

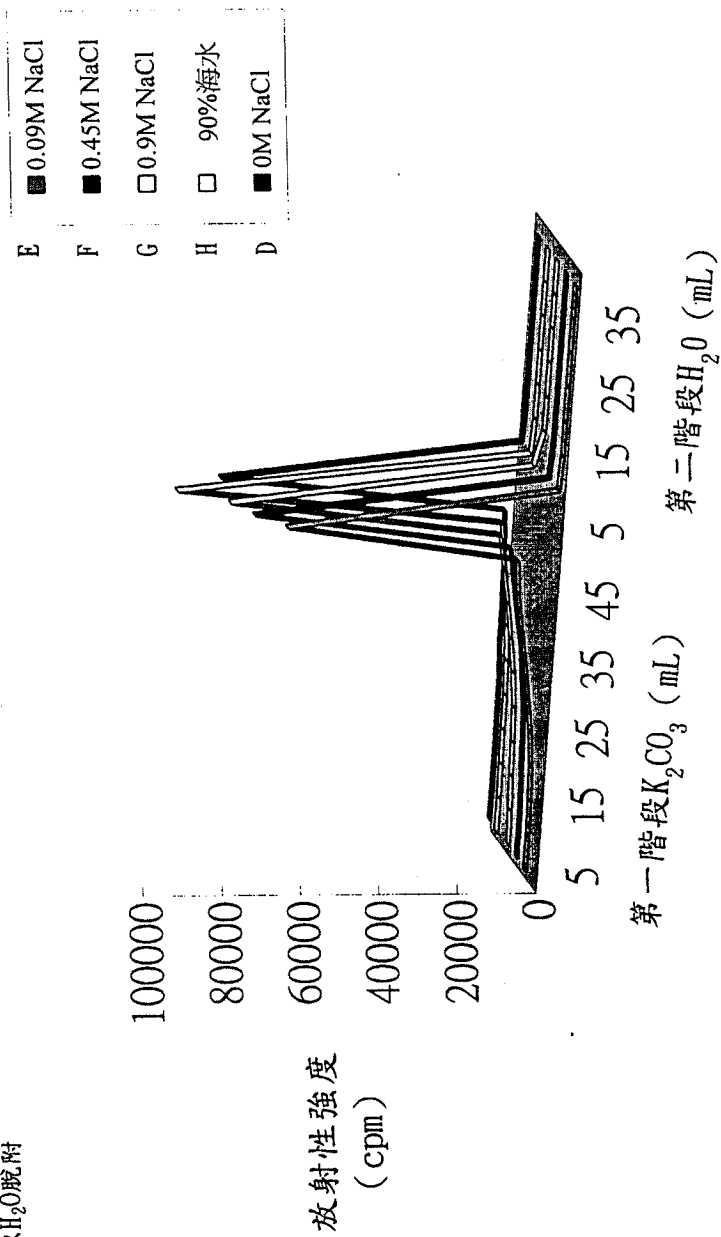


圖 2 離子強度對於碘-2000 樹脂吸附碘-129 影響之圖

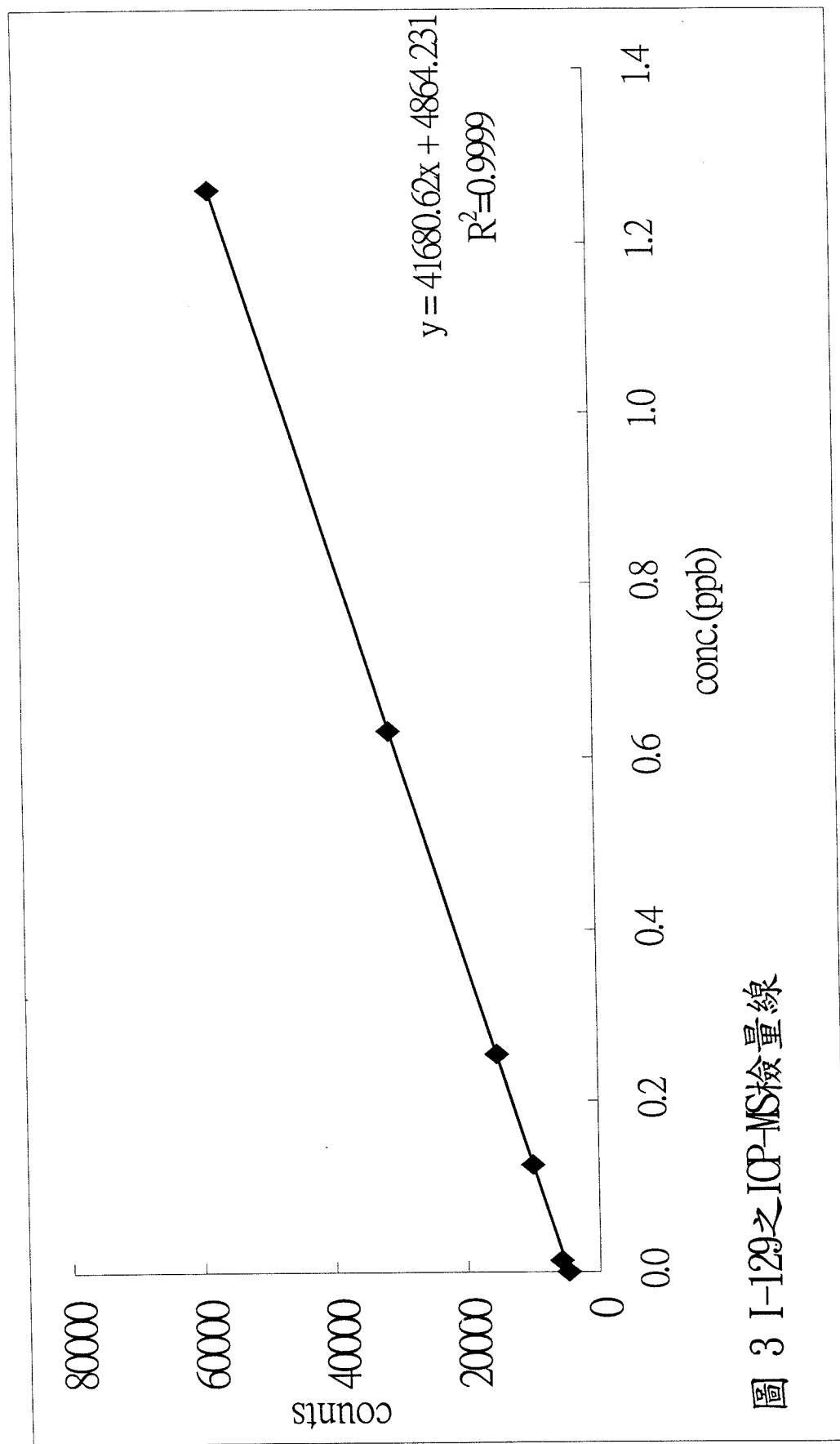


圖 3 I-129之ICP-MS檢量線